Die elektromagnetische Trennung der radioaktiven Caesiumisotope für optische Isotopieverschiebungsmessungen

INAUGURAL-DISSERTATION
zur Erlangung der Doktorwürde
der Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Philipps-Universität Marburg/Lahn

Vorgelegt von
Hermann Wagner
aus Kassel

Marburg/Lahn 1968

E. Symon · Foto-Druck · 355 Marburg/L. · Friedrichsstr. 3

Die elektromagnetische Trennung der radioaktiven Caesiumisotope für optische Isotopieverschiebungsmessungen

INAUGURAL-DISSERTATION
zur Erlangung der Doktorwürde
der Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Philipps-Universität Marburg/Lahn

Vorgelegt von
Hermann Wagner
aus Kassel

Marburg/Lahn 1968

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

Von der Naturwissenschaftlichen Fakultät der
Philipps-Universität Marburg/Lahn als

Dissertation angenommen am: 21. Juni 1968

Tag der mündlichen Prüfung am: 6. Juli 1968

Berichterstatter: Prof. Dr. W. Walcher

Mitberichterstatter: Prof. Dr. G. Grawert

INHALTSVERZEICHNIS

	Seite
1. Einleitung: Probleme bei der Trennung von Radioisotopen und das Caesiumprojekt	5
2. Der neue Marburger Isotopenseparator	
2.1. Beiträge von Mitarbeitern beim Bau der Anlage	8
2.2. Übersicht über die Anlage	9
2.3. Die Stabilisierung	
2.3.1. Die Strahlortstabilisierung	10
2.3.2. Die schnelle Stabilisierung	14
2.4. Die Ionenoptik	
2.4.1. Separator und Spektrometergeometrie	16
2.4.2. Das Beschleunigungssystem	17
2.4.3. Die ebenen Linsen zur Abbildung in Z-Richtung	21
2.5. Der Strahlenschutz	
2.5.1. Kontaminierungen	22
2.5.2. Der radioaktive Labortrakt	25
2.5.3. Die Strahlenbelastung der Operateure	26
3. Die Untersuchung der Ausbeute	
3.1. Die neue Caesiumionenquelle	
3.1.1. Die Entwicklung der Alkaliionenquellen	27
3.1.2. Der Aufbau der neuen Ionenquelle	28
3.1.3. Der Betrieb der Quelle	29
3.2. Die Messung der Quellenausbeute	
3.2.1. Die Meßmethode	31
3.2.2. Der Tracer	32
3.2.3. Die Auswertung der Messungen	33
3.2.4. Fehlerabschätzung	35
3.3. Die Berechnung der Ausbeute	
3.3.1. Die Diffusion des Cs durch die poröse Molybdänschicht	37
3.3.2. Die Oberflächendiffusion und Desorption der Caesiumadteilchen	39
3.3.3. Die Elektronenaustrittsarbeit für caesiumbedecktes Molybdän	40
3.3.4. Der Desorptionsstrom nach Levine und Gyftopoulos	42
3.3.5. Die Berechnung der Ionisierungsausbeute I anhand eines einfachen Modells	43

Seite

3.4. Der Vergleich zwischen gemessenen und berechneten Ausbeuten

3.4.1. Die Berechnung von n_I aus den gemessenen n_Q-Werten 47

3.4.2. Vergleich zwischen der theoretischen Kurve n_I und den Werten aus 3.4.1. 48

3.4.3. Die Ausbeute mehrfach verwendeter Emitter 50

4. Die Trennung der radioaktiven Caesiumisotope

4.1. Übersicht über die Caesiumisotope 51

4.2. Abtrennung der Isotope ^{135}Cs und ^{137}Cs 52

4.3. Abtrennung des Isotops ^{134}Cs 53

4.4. Abtrennung des Isotops ^{131}Cs 54

5. Übersicht über die von H. Hühnermann erzielten optischen Meßergebnisse mit den präparierten Caesiumisotopen 56

6. Zusammenfassung 57

7. Anhang

7.1. Figurenverzeichnis 58

7.2. Tabellenverzeichnis

7.3. Literaturverzeichnis

7.4. Lebenslauf

1. Probleme bei der Trennung von Radioisotopen und das Caesiumprojekt

Drei Größen sind wesentlich zur Charakterisierung der Leistung eines elektromagnetischen Isotopentrenners. Der Durchsatz nennt den Gesamtionenstrom zum Auffänger. Die Anreicherung beschreibt die Änderung des Mischungsverhältnisses der Isotope durch die Trennung. Die Ausbeute gibt an, welcher Bruchteil von der Ausgangsmenge des gewünschten Isotops nach der Trennung zur Verfügung steht. Die Anreicherung hängt von den Betriebsdaten ab, und ist schwer reproduzierbar. Man verwendet daher zur Beschreibung des Trenners anstelle der Anreicherung das Auflösungsvermögen, das die Berechnung einer maximalen Anreicherung für den störungsfreien Trennbetrieb zu berechnen gestattet. Das Auflösungsvermögen ist der Massendispersion direkt und der Bildbreite am Auffänger umgekehrt proportional.

Bei der Trennung von Radioisotopen ist die Chargenmenge wegen der radioaktiven Strahlenbelastung immer beschränkt. Außerdem wird durch die aufwendige Herstellung vieler Radionuklide die Ausgangsmenge oft noch weiter begrenzt. Bei der Abtrennung des ^{131}Cs, die in Kapitel 4.4 beschrieben wird, standen so nur Chargen von insgesamt 10^{-5}g zur Verfügung. Da für eine optische Isotopieverschiebungsmessung 10^{-5} g bis 10^{-6} g benötigt werden, muß die Ausbeute bei der Trennung in der Größenordnung 0,1 bis 1 liegen, anderenfalls ist das Projekt nicht durchführbar.

Die Ausgangskonzentration für die Massentrennung liegt bei radioaktiven Isotopen oft sehr niedrig. Bei der ^{134}Cs-Abtrennung, die im Kapitel 4.3 beschrieben wird, kamen in der Charge auf 1 Atom ^{134}Cs etwa 20 Atome ^{133}Cs. Bei einer Abtrennung von ^{131}Ba aus neutronenaktiviertem natürlichem Barium kommen etwa auf 1 Atom ^{131}Ba 10^6 Atome der anderen Bariumisotope. Durch eine Voranreicherung vor der Aktivierung wird das Verhältnis natürlich verbessert, aber nur etwa um einen Faktor 200. Damit wird immer noch eine Anreicherung um einen Faktor 10^4 notwendig. Bei diesen hohen Werten der Anreicherung muß man den Begriff der Bildbreite bei der Definition das Auflösungsvermögen etwas schärfer formulieren, damit zwischen

Auflösungsvermögen und Anreicherung ein quantitativer Zusammenhang bestehen bleibt. Man setzt so als Bildbreite nicht mehr wie bei der Trennung der stabilen Isotope die Halbwertsbreite, sondern die Hundertstelwertsbreite oder die Tausendstelwertsbreite an.

Da eine Trennung über Zeiten von einigen Minuten bis zu einigen Stunden läuft, ist eine sorgfältige Stabilisierung des Ionenbündels nötig. Jede Wanderung oder Oszillation des Ionenbündels wirkt wie eine Linienverbreiterung und reduziert die Anreicherung.

Der Durchsatz wird in den beiden Grenzfällen problematisch. Bei geringer Ausgangskonzentration wie bei der angeführten ^{131}Ba-Abtrennung steigt die Menge des zu trennenden Materials bis auf Grammengen an und man benötigt den maximalen Durchsatz, um innerhalb der Halbwertszeit von 12 Tagen das Material zu trennen. Liegt die Ausgangskonzentration in der Größenordnung 1, so benötigt man wie bereits für die ^{131}Cs-Abtrennung angeführt, Chargenmassen von 10^{-5} g. Dann werden entweder die Ströme so niedrig, daß man kaum die Position und die Form der Massenlinie beobachten kann, oder die Trennzeit wird so kurz, daß schon bei der Justierung hohe Verluste auftreten können.

Aus der radioaktiven Strahlung der Nuklide entstehen neue Schwierigkeiten. Die Strahlenbelastung kann bei beliebigem Aufwand immer gebannt werden. Aus den finanziellen Möglichkeiten ergibt sich eine Grenze für die zulässigen Quellstärken der zu trennenden Nuklide. Durch spezielle Techniken lassen sich diese Grenzen zu höheren Werten verschieben. Wir haben unsere Auffangtechnik und die Ionenerzeugung so entwickelt, daß keinerlei chemische Bearbeitung der Quellen von der Trennung bis zur optischen Messung notwendig ist. Dazu wird z. B. das getrennte Isotop im Trenner direkt in die Schüler-Hohlkathode eingeschossen. Kohlenwasserstoffe, die in die Hohlkathode gelangen, können die Anregung der zu messenden optischen Übergänge verhindern. Durch Reihenversuche mit Mikromengen von eingeschossenem Caesium konnten die Materialien, Geometrien und Bearbeitungsmethoden für solche Hohlkathodenauffänger gefunden werden. Dadurch und durch Maßnahmen am Isotopentrenner, wie z. B. Reduktion des Restgasdruckes, Vorbehandlung der Ionenquelle und durch eine Retardierung der einzuschießenden Ionen

konnte die Caesiummasse, die für eine optische Isotopieverschiebung benötigt wird, auf 10^{-6} g und weniger reduziert werden.

Unser Hauptinteresse liegt beim Caesiumprojekt in der Untersuchung von Kernmomenten und von Strukturänderungen im Kern beim Einbau von Neutronen. Auskunft darüber können wir durch die Messung der Hyperfeinstruktur der Spektrallinien und durch die Messung ihrer Isotopieverschiebung erlangen. Die optischen Messungen wurden von H. Hühnermann [HUE 66] mit der von ihm aufgebauten registrierenden Interferometeranordnung durchgeführt. Durch ein von H. Hühnermann entwickeltes Auswertungsverfahren der digitalen Meßwerte mit Hilfe des Elektronenrechners konnte der Fehler bei der Bestimmung der Isotopieverschiebung um ein bis zwei Größenordnungen gesenkt werden. Nun wurde jedoch ein systematischer Fehler wesentlich, der dadurch entsteht, daß die Atome der beiden Isotope in verschiedenen Hohlkathoden und damit in verschiedenen Gasentladungen zur Lichtemission angeregt werden. Deshalb wurde dann nicht mehr jeweils ein Isotop in einen Hohlkathoden-Auffänger geschossen, sondern gleichteilige Gemische von zwei Isotopen. Dabei muß durch häufiges Umschalten vom Einschuß eines Isotops zum anderen dafür gesorgt werden, daß ein homogenes Gemisch entsteht.

2. Der neue Marburger Isotopenseparator.

2.1. Die Mitarbeiter beim Bau der Anlage

Der neue Marburger Isotopenseparator wurde für die Trennung von Radioisotopen konstruiert. Am Bau der Anlage haben unter der Leitung des Autors einige Diplomanden und Ingenieure mitgewirkt. Darüber soll hier ein Überblick gegeben werden. Herr Ingenieur P. Boldyref hat den Umlenkmagneten, die Versorgungskreise der Ionenquelle und Teile der Vakuumapparatur entworfen. Von Herrn Ingenieur H. Baur stammt der erste Strahltaster, von Herrn Ingenieur G. Hocke der Ionenquellenstand mit den räumlichen Verstellungen. An fast allen Installationen hat unserer Laborant und Elektromeister, Herr F. Lüke, mitgearbeitet. Herr Ing. Fleischer ist zur Zeit mit Servoanlagen für die Anlage beschäftigt. Einige Physiker haben im Rahmen von Diplomarbeiten Probleme untersucht, die bei der Entwicklung des Trenners auftraten. Die Untersuchungen von Dr. S.v.Goeler [GOE 60] am Bogenplasma führten zur Konstruktion einer Magnetionenquelle [GOE WAG 63], die jedoch für größere Chargenmengen konstruiert ist, als beim Caesiumprojekt zur Verfügung standen. Dipl. Physiker G. Wahl untersuchte die Diffusion von Gasen durch poröse Molybdänschichten und die Veränderungen dieser Schichten beim Sintern [WAH 65]. Auf diese Studien stützte sich die Entwicklung der in Kap. 3.1. beschriebene Caesiumionenquelle. Auch der Bau des Prototyps einer Alkaliionenquelle für Chargen bis zu 1 g von Dipl.Phys. M. Mussawi [MUS 67] hat aus der Wahlschen Arbeit Nutzen gezogen. Dipl.Phys. L. Delgmann berechnete mit einem einfachen Modell den Öffnungsfehler verschiedener elektrostatischer Einzellinsen auf Grund von Literaturangaben [DEL 61], [DEL WAG 62]. Dipl. Phys. P. Bautz rechnete mit dem Computer Trägerbahnen in einer ebenen Retardierungslinse aus [BAU 65]. Dipl.Phys. G. Kroemer hat die Ionenextraktion aus der Gölerschen Plasmaionenquelle studiert und zahlreiche technische Probleme gelöst, die bei der Erhöhung der Beschleunigungsspannung auf 70 kV auftraten [KRO 66]. Die Leistungsfähigkeit der Werkstatt des Physikalischen Institutes unter der Leitung von Herrn Mechanikermeister R. Zeisig hat die Herstellung der Anlage in eigener Regie und die Verwirklichung moderner Bauweisen ermöglicht.

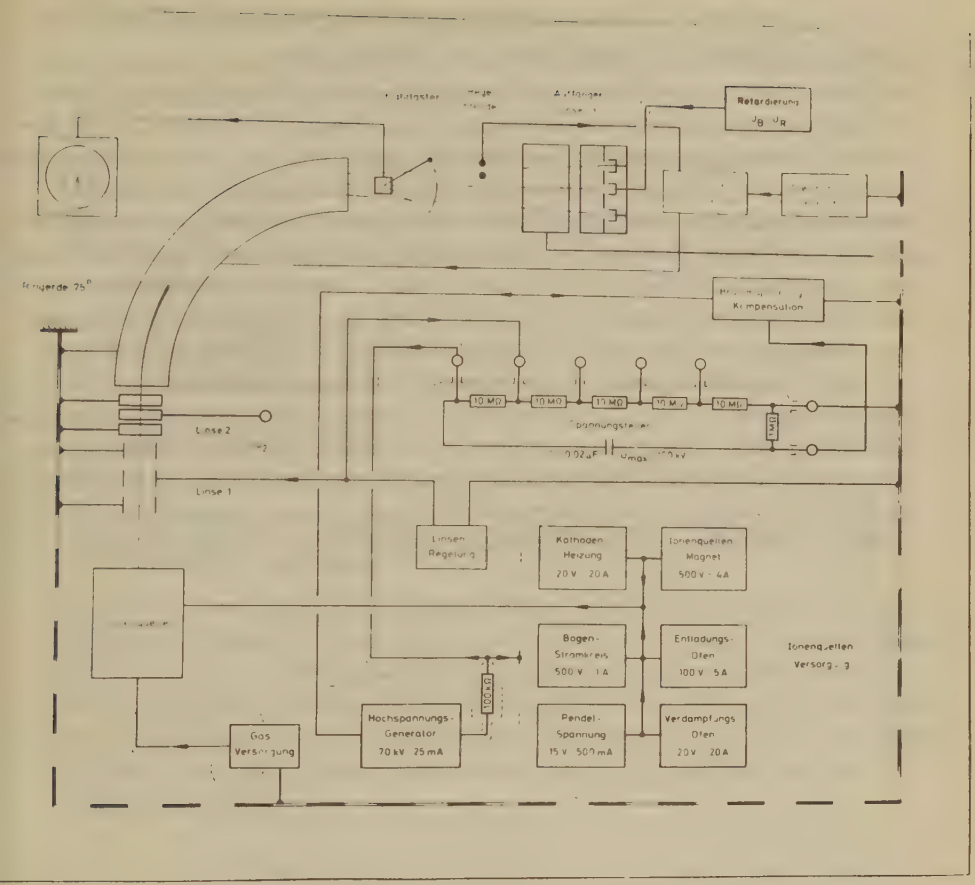

Fig. 2.1. Blockschaltbild vom neuen elektromagnetischen Isotopenseparator in Marburg aus KRO 66 .

2.2. Übersicht über die Trennanlage

Fig. 2.1. zeigt den schematischen Aufbau des Trenners und der wichtigsten Hilfseinrichtungen außer der Vakuumanlage.

Die Ionenquelle wird durch den Kathodenheizkreis der Ionenquellenversorgung geheizt und durch den Hochspannungsgenerator auf eine positive Spannung gegen Erde von maximal 70 kV gelegt. Die Hochspannung wird dabei durch einen frequenzabhängigen Spannungsteiler und die Brummspannungskompensation von der überlagerten Wechselspannungskomponente befreit. Das aus der Quelle austretende Ionenbündel wird durch die elektrostatischen Einzellinsen 1 und 2 abgebildet. Im Magnetfeld tritt neben einer weiteren Abbildung eine Impulsdispersion ein, die zur Trennung der isotopen Ionenbündel führt. Der Strahltaster zeigt in einem angeschlossenen Oszillografen das Massenspektrum kurz vor der Auffangebene. Die Strahlortstabilisierung mißt mit den beiden Regelblenden die Verschiebungen des Ionenbündels in der Bahnebene und regelt sie durch eine Nachstellung des Magnetfeldes aus. Schließlich werden die Ionen vor dem Auffangen in einer ebenen Retardierungslinse L 3 auf eine kinetische Energie unter 1000 eV abgebremst.

2.3. Die Stabilisierungen

2.3.1. Die Strahlortstabilisierung

Für das Auflösungsvermögen P des elektromagnetischen Massenseparators erhält man z.B. nach [EWA HIN 53]

$$P = \left(s' G + \frac{K''}{2} \frac{\Delta V}{V} + K'' \frac{\Delta B}{B} \right)^{-1} \cdot \frac{1}{2} K''$$

Da bei ist K" der Dispersionskoeffizient. Für einen Sektorwinkel von 90° und senkrechten Ein- und Austritt der Bündelachse aus den Magnetfeldgrenzen ist:

a) im Separatorfall (Fig. 2.10.) $K'' = R_o$

b) im Spektrometerfall (Fig.2.11.) $k'' = 2R_o$

s' ist die Spaltbreite,

$\frac{\Delta V}{V}$ die relative Energiedispersion der Ionen und

$\frac{\Delta B}{B}$ die relative Schwankung der magnetischen Kraftflussdichte vom Umlenkmagneten.

Da der Massentrenner im Gegensatz zum Massenspektrometer wesentlich größere Durchsätze (von einigen Mikromol pro Stunde bis zu einigen Millimol pro Stunde) haben soll, läßt sich die "Spaltbreite s' " nicht beliebig verkleinern. Man kann nur fordern, daß die Beiträge, die aus der Instabilität der Beschleunigungsspannung und des Magnetfeldes herrühren, klein sind gegen die Bildgröße des "Spaltes". Daraus ergibt sich

$$\frac{K''}{2} \frac{\Delta V}{V} \ll s' G$$

$$K'' \frac{\Delta B}{B} \ll s' G$$

Setzt man als Ziel ein Auflösungsvermögen von 1000 bei Spektrometergeometrie an, so gehen diese Gleichungen über in

$$\frac{\Delta V}{V} \ll 10^{-3}$$

$$\frac{\Delta B}{B} \ll 5.10^{-4}$$

Wir wollen daraus zwei sog. Stabilisierungsbedingungen ableiten:

$$\frac{\Delta V}{V} \leq 1.10^{-4} \quad ; \quad \frac{\Delta B}{B} \leq 0{,}5.10^{-4}$$

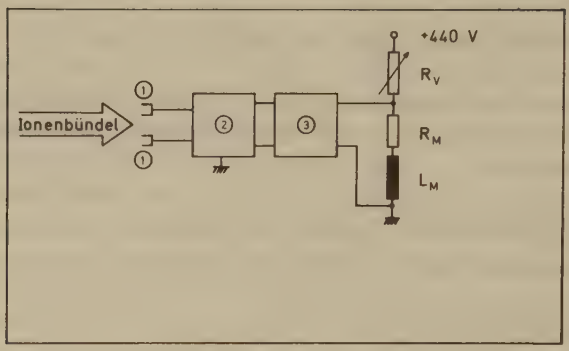

Fig. 2.2. Blockschaltbild der Magnetfeldregelung.

Die beiden Regelblenden (1) erhalten bei einer Änderung der Lage des Ionenbündels ungleiche Anteile vom Ionenstrom. Durch einen Differenzverstärker (2) wird ein Signal aus der Differenz der beiden Teilströme gebildet und damit der Leistungsverstärker (3) gesteuert, der parallel zur Erregerwicklung des Magneten (R_M + L_M) liegt und den Erregerstrom regelt.

Durch die Stabilisierungsbedingungen haben wir die zulässige Schwankung von der kinetischen Energie der Ladungsträger und die zulässige Variation vom Magnetfeld festgelegt.

Die kinetische Energie der Ionen setzt sich aus der Anfangsenergie eU_0, die bei unserer Ionenquelle einen Mittelwert von etwa 0,12eV hat, und aus der Beschleunigungsenergie eU_B, die entsprechend der gewählten Beschleunigungspannung bei den Caesiumtrennungen maximal 30keV betrug, zusammen.

Die Schwankung der Beschleunigungspannung hat 2 Anteile:

1. die periodische Brummspannung der Frequenz von 500Hz, die noch zusätzlich mit einer Frequenz von 50Hz moduliert ist.
2. langsame, nichtperiodische Komponenten mit Aufbauzeiten von Sekunden bis Minuten.

Das Magnetfeld wird von einem Elektromagneten erzeugt. Der Magnetstrom stammt von einem Gleichspannungsgenerator, der eine Vorstabilisierung hat. Die Generatorspannung enthält eine Brummspannung von 50Hz, die bis zu 5% der Gleichspannung betragen kann. Durch die große Induktivität des Magneten im Vergleich mit dem ohmschen Widerstand bei der Störfrequenz von 50Hz, sinkt die Wechselstromkomponente im Magnetkreis bereits ohne Regelung auf weniger als 1.10^{-3} vom Gleichstromanteil ab. Neben diesen schnellen periodischen Schwankungen, tritt eine langsame Wanderung der Generatorausgangsspannung auf, die durch die Vorstabilisierung auf 2% begrenzt ist. Anteile mit Aufbauzeiten von Sekunden bis Minuten werden fast ungeschwächt auf das Magnetfeld übertragen.

Unsere Stabilisierung arbeitet mit zwei Reglern, die sich die Arbeit teilen. Dadurch wird der Aufbau des einzelnen Gerätes einfacher und robuster als bei einer Universalregelung. Die Magnetfeldregelung nach Hofmann [HOF 54A] regelt langsame und schnelle Störungen im Magnetstromkreis aus und noch zusätzlich die langsamen Änderungen der Beschleunigungsspannung. Die Brummspannungskompensation regelt die schnellen Schwankungen der Hochspannung aus.

Die Magnetfeldregelung ist von Hofmann ausführlich diskutiert worden [HOF 54B]. Wir wollen hier nur die Frequenzabhängigkeit von Regelfaktor und Regelbereich betrachten, weil sich aus ihren Grenzen die Notwendigkeit einer Zusatzregelung ergibt. Die Magnetfeldregelung ist als Blockschaltbild in Fig. 2.2. dargestellt. Durch einen Doppeltaster 1, der sich dicht vor dem Auffänger befindet, wird jede Strahlverschiebung in der Bahnebene senkrecht zur Sollbahn als Differenz-

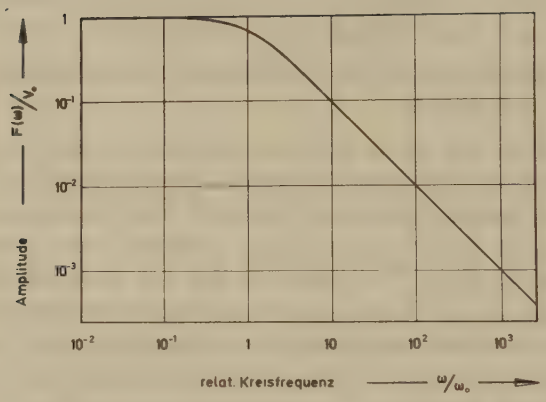

Fig. 2.3. Der Amplitudengang der aufgetrennten Magnetfeldregelung. V_0 ist die maximale Verstärkung des Verstärkers, $\tau_0 = \frac{1}{\omega_0}$ die Zeitkonstante des Verzögerungsgliedes. Beide Koordinaten sind im logarithmischen Maßstab aufgetragen.

strom gemessen. Über einen Differenzverstärker 2 wird das Regelglied, das einen Parallelwiderstand zur Magnetwicklung darstellt, gesteuert. Die Magnetstromänderung ergibt sich aus der Widerstandsänderung des Regelgliedes und dem Stromteilerverhältnis von Vorwiderstand R_v und dem Gesamtwiderstand R_M vom Magneten. Die Regelung ist ein Proportionalregler mit einer Verzögerung erster Ordnung. Das Bodediagramm Fig. 2.3. zeigt den Frequenzgang der Verstärkung des aufgetrennten Regelkreises.

Die Kreisfrequenz ist durch Multiplikation mit der Zeitkonstanten $\tau_o = \frac{1}{\omega_o}$ des Kreises normiert worden, die Amplitude durch Division mit ihrem Maximalwert Vo. Vom Werte $\frac{\omega}{\omega_o} = 0$ bis etwa $\frac{\omega}{\omega_o} = 1$ ist die Verstärkung konstant, oberhalb dieses Bereiches sinkt sie wie $\frac{1}{\omega}$ ab. Der Regelfaktor $\varrho = 1+V$ zeigt ein gleiches Verhalten.
Die Zeitkonstante des offenen Regelkreises ist

$$\tau_o = \frac{L_M}{R_M+R_V}$$

Störungen, die im geschlossenen Regelkreise am Eingang des Stellgliedes auftreten, werden infolge der Gegenkopplung mit einer Zeitkonstanten τ_M ausgeregelt:

$$\tau_M = \frac{\tau_o}{\varrho}$$

Im Frequenzbereich $\frac{\omega}{\omega_o} \leqq 1$ ist nach Fig. 2.3. die Verstärkung und damit auch der Regelfaktor konstant. Er beträgt etwa 400 bis 1000 in der von Hofmann angegebenen Anordnung. Aus dem Bodediagramm ergibt sich damit eine obere Grenzfrequenz der Regelung von

$$\omega_g \tau_o = 100$$

$$\nu_g = 30\text{Hz}$$

Der Amplitudenbereich der Regelung. Der Arbeitsbereich des Stellgliedes ist durch die zulässige Verlustleistung der Röhren begrenzt auf etwa 1 A als maximale Aussteuerung ΔI_R^{max}.
Dem entspricht eine maximale Änderung des Magnetstromes von ΔI_M^{max}

$$\Delta I_M^{max} = \Delta I_R^{max} \frac{R_V}{(R_M+R_V)} \cdot \frac{1}{(1+\omega^2 \tau_o^2)^{1/2}}$$

und

$$\frac{\Delta I_M^{max}}{I_M} = \frac{\Delta I_R^{max}}{I_M} \frac{R_V}{(R_M+R_V)} \frac{1}{(1+\omega^2 \tau^2)^{1/2}}$$

$V/_{Hz}$	$\frac{J_M^{max}}{J_M}$
0,1	$5 \cdot 10^{-2}$ bis $2 \cdot 10^{-1}$
1	$5 \cdot 10^{-3}$ bis $2 \cdot 10^{-2}$
10	$5 \cdot 10^{-4}$ bis $2 \cdot 10^{-3}$
50	$1 \cdot 10^{-4}$ bis $4 \cdot 10^{-4}$

Tabelle 2.1.

Die Frequenzabhängigkeit des Regelbereiches der Magnetfeldregelung.

Störungen, die auf die Trägerbahn einwirken und nicht über den Magnetstromkreis laufen, werden mit einem frequenzabhängigen Regelbereich ausgeregelt. In Tabelle 2.1. sind einige Zahlenwerte für unsere Anlage gegeben. Die Tabelle zeigt, daß Hochspannungsschwankungen mit einer Frequenz von 50Hz oder gar 500Hz und einer relativen Amplitude von 5.10^{-3} von der Magnetfeldregelung nicht mehr ausgeregelt werden können. Deshalb wurde als Ergänzung eine 2. Regelung entwickelt, die die Wechselspannungskomponenten der Hochspannung ausregelt.

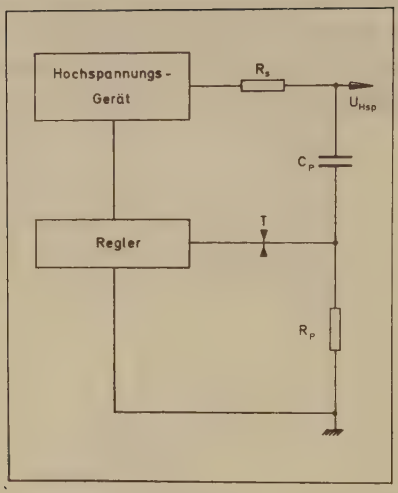

Fig. 2.4. Blockschaltbild der schnellen Stabilisierung.

Die Wechselspannungskomponente, die der Hochspannung U_{Hsp} überlagert ist, wird über einen frequenzabhängigen Spannungsteiler aus dem Hochspannungskondensator C_p und dem Widerstand R_p im Punkte T dem Regler zugeführt. Der Regler kompensiert die Wechselspannung, indem er den Erdpunkt des Hochspannungsgerätes anhebt.

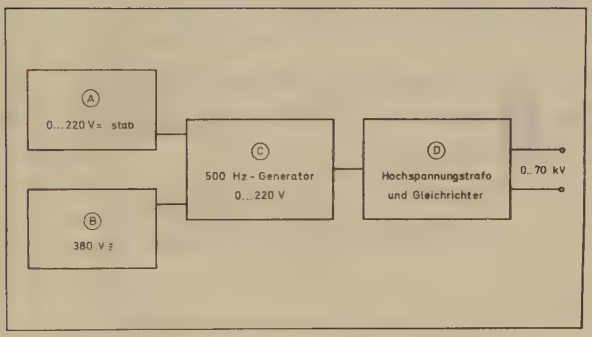

Fig. 2.5. Blockschaltbild des Hochspannungsgerätes.

Der Hochspannungsteil D arbeitet mit einer Eingangsspannung von 0 bis 220 V und einer Frequenz von 500 Hz. Der 500 Hz-Generator C wird mit Drehstrom B betrieben und erhält den Gleichstrom für die Erregung aus einem stabilisierten Netzgerät A. Die Anlage wurde von der Fa. Roentgen-Seifert, Hamburg geliefert.

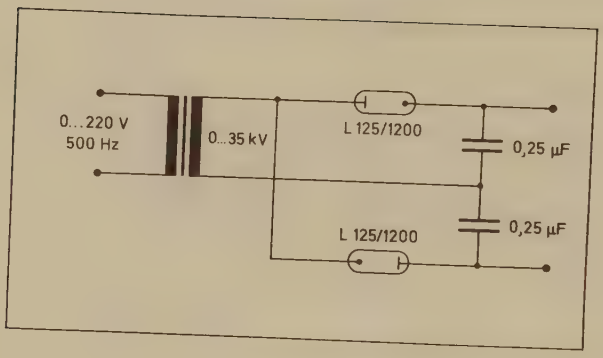

Fig. 2.6. Schaltschema des Hochspannungsteiles D in Fig. 2.5.
Die Ausgangsspannung des Hochspannungstransformators beträgt maximal 35 kV. Durch eine Spannungsverdopplerschaltung mit den beiden Ventilen L125/1200 und den Hochspannungskondensatoren von 0,25 uF Kapazität wird eine maximale Ausgangsspannung von 70 kV erreicht.

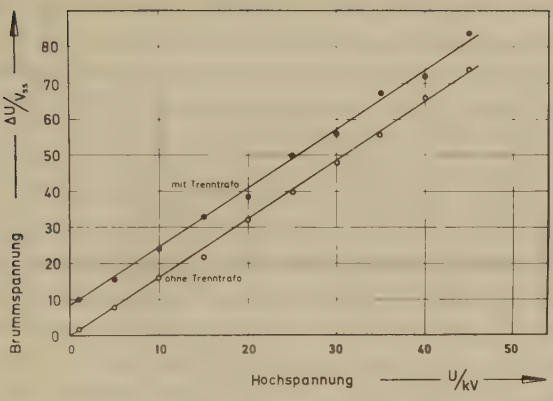

Fig. 2.7. Der Restbrumm der Hochspannung ohne die schnelle Stabilisierung bei konstanter Belastung.

Die Kreise sind Meßwerte für die Brummspannung, die beobachtet wird, wenn an der Hochspannung nur ein ohmscher Widerstand gegen Erde zur Belastung hängt. Die Punkte gelten für den Fall, daß außerdem die Sekundärwicklung des Trenntransformators an die Hochspannung angeschlossen ist. Dann tritt eine 50Hz-Komponente im Restbrumm von etwa 8.5 V_{ss} zusätzlich auf zu dem 500Hz-Restbrumm des Hochspannungsgerätes.

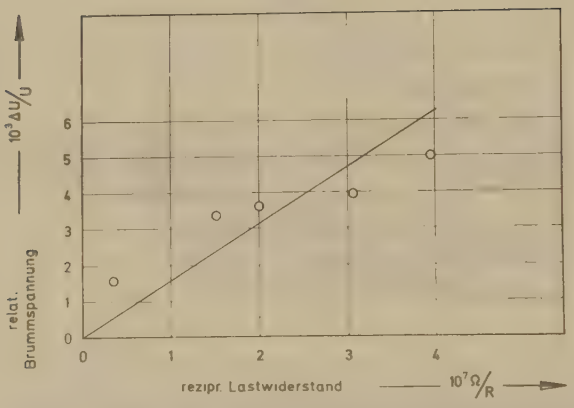

Fig. 2.8. Der Hochspannungsbrumm ohne Stabilisierung als Funktion des Belastungswiderstandes.

2.3.2. Die schnelle Stabilisierung.

Zur Ergänzung der Magnetfeldregelung wurde die sog. schnelle Stabilisierung gebaut. Fig. 2.4. zeigt den schematischen Aufbau. Sie regelt die Welligkeit der Beschleunigungsspannung aus. Über einen frequenzabhängigen Spannungsteiler wird der Wechselspannungsanteil der Hochspannung einem Verstärker zugeführt, der in Gegenphase den Fußpunkt des Hochspannungsgerätes anhebt. Die Regelung arbeitet im Bereich von 10 Hertz bis 10^3 Hertz mit etwa konstantem Regelfaktor 20. Zur Bestimmung der mit dieser Anordnung erreichbaren Stabilität müssen wir noch die Restwelligkeit der Hochspannung ohne die Stabilisierung bestimmen. Die Hochspannung wird durch ein von der Firma Roentgen-Seifert, Hamburg, geliefertes Gerät erzeugt, dessen schematischer Aufbau in Fig. 2.5. und Fig. 2.6. gezeigt wird. Mit Hilfe eines Drehstrommotors wird ein 500 Hertz-Generator betrieben. Die Ausgangsspannung von max. 220 V läßt sich über den Erregerstrom des Generators einstellen. Mit dieser variablen Wechselspannung wird ein Hochspannungstrafo gespeist, der eine max. Ausgangsspannung von 35 kV liefert.

Eine Spannungsverdopplerschaltung mit zwei Hochspannungsgleichrichterröhren liefert nach Teilschaltbild 2.6. die gleichgerichtete Hochspannung von max. 70 kV bei einer Belastbarkeit von 20 mA. Wir erwarten auf Grund der Schaltung eine Restwelligkeit der Hochspannung

$$U_H = \frac{2 \cdot B}{C_H \cdot V} \qquad \frac{U_H}{U_H} = \frac{2}{R_B \cdot C_H \cdot V}$$

Die Messkurve 2.7. zeigt, daß die Ausgangswechselspannung bei konstantem Lastwiderstand proportional der Ausgangsgleichspannung ist. Wir können daher die Wechselspannungskomponente als Funktion des Lastwiderstandes angeben. Fig. 2.8. zeigt ausgezogen den theoretischen Verlauf nach der obigen Gleichung und die Ergebnisse verschiedener Messungen. Um unsere Stabilisierungsbedingung zu erfüllen, müssen wir bei max. Belastung (70kV,20 mA) die Ausgangswechselspannung um einen Faktor von 20 reduzieren.

Beim primärseitigen Einschalten des Trenntransformators wird noch eine zusätzliche Wechselspannung von 50 Hertz kapazitiv aus dem Netz eingespeist. Fig. 2.7. zeigt die Ausgangswechselspannung ohne Regelung vor und nach dem Einschalten des Trenntrafos. Die eingespeiste 50 Hz Komponente hat eine Größe von etwa 8,5 V_{ss}.

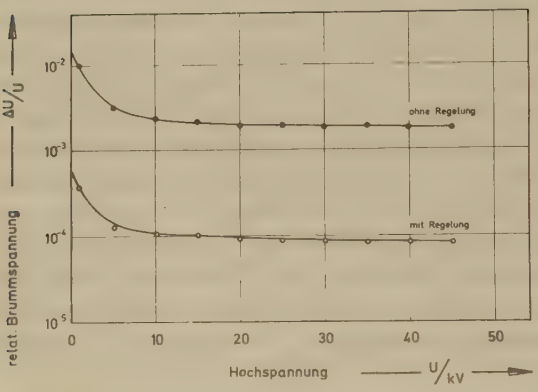

Fig. 2.9. Der relative Hochspannungsbrumm bei konstanter Belastung ohne die schnelle Stabilisierung und mit der schnellen Stabilisierung.

Die Meßwerte ohne Stabilisierung sind als Punkte, die Meßwerte für den stabilisierten Betrieb als Kreise eingezeichnet. Variiert wurde der Wert der Hochspannung.

Bei Ausgangsspannungen unter 10 kV tritt diese 50 Hz-Komponente bei der relativen Spannungsschwankung stark in Erscheinung, wie Fig. 2.9. zeigt. In die selbe Figur ist auch die Ausgangswechselspannung mit eingeschalteter Regelung eingezeichnet. Für die Ausregelung der 50Hz Störung entnimmt man den Kurven einen Regelfaktor $\varsigma(50)=27$ und für die 500Hz Störung den Regelfaktor $\varsigma(500) = 22$. Damit wird der aus der Stabilisierungsbedingung abgeleitete Wert des Regelfaktors von 20 überschritten.

Der Aussteuerungsbereich der schnellen Stabilisierung. Der Regelbereich ist durch den Arbeitsbereich des Verstärkers begrenzt. Maximal kann eine Wechselspannung von etwa 400V ausgeregelt werden, während die größte auftretende Störspannung nach Fig. 2.8. kleiner als 350V ist.

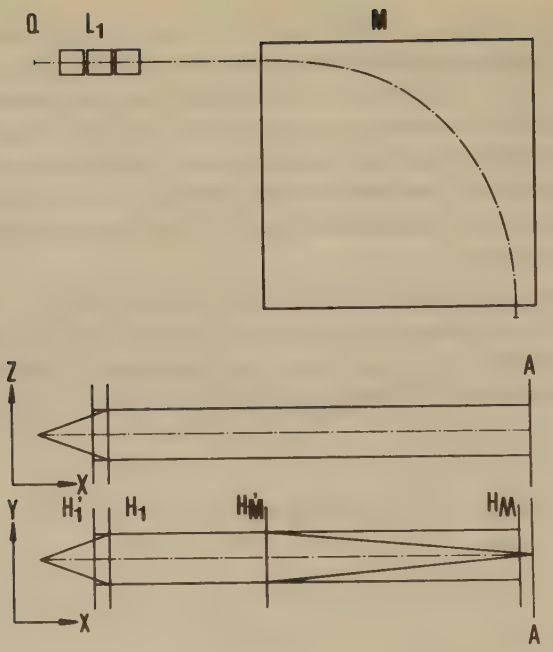

Fig. 2.10. Die astigmatische Abbildung im Trenner mit Separatorgeometrie.

Q enthält die Ionenquelle mit der Beschleunigungsstrecke. L_1 ist die elektrostatische Einzellinse mit Relationssymmetrie. M ist das Magnetfeld. X ist die Laufrichtung der Ionen. Die Koordinaten Y und X spannen die Bahnebene auf. Die Koordinate Z hat die Richtung des Magnetfeldes M. H bezeichnet jeweils eine dingseitige Hauptebene, H' die bildseitige Hauptebene. A ist die Auffangebene.

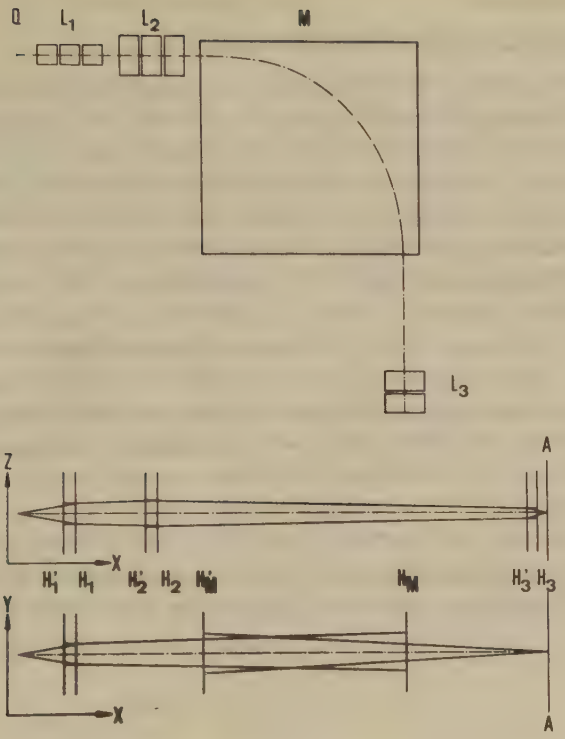

Fig. 2.11. Stigmatische Abbildung im Trenner mit Spektrometergeometrie.

Gegenüber Fig. 2.10 sind je eine ebene Linse vor und hinter dem Magneten hinzugekommen. Sie erweitern die astigmatische Abbildung nach Fig.2.10. zur stigmatischen Abbildung. Der Strahlengang in der Bahnebene ist symmetrisch im Magneten. Diese Abbildung wird Spektrometergeometrie genannt.

2.4. Die Ionenoptik

2.4.1. Separator- und Spektrometergeometrie

In Fig. 2.10. und Fig. 2.11. werden die frühere astigmatische Abbildung des Marburger inaktiven Separators und die stigmatische Optik des aktiven Separators einander gegenübergestellt. Die astigmatische Abbildung ist bereits früher beschrieben worden [WAL 37]. Durch das Beschleunigungssystem Q wird ein Overcross erzeugt, der von einer rotationssymmetrischen elektrostatischen Einzellinse L1 ins Unendliche abgebildet wird. Bei senkrechtem Ein- und Austritt hat das homogene Magnetfeld M nur senkrecht zum Feld Abbildungseigenschaften. So entstehen in der Bildebene isotope Massenlinien mit der Höhe, die durch den Durchmesser des in der Linse 1 erzeugten Parallelbündels und die Aufweitung infolge der Aparatur bestimmt wird. Die stigmatische Abbildung erweitert die Optik um 2 ebene Linsen, die die Abbildung in Z-Richtung ergänzen. Die Linse L2 eine ebene Einzellinse, sitzt vor dem Magnetfeld und erzeugt eine Linienhöhe von 5mm bis 8mm in der Bildebene an Stelle der ursprünglichen Linienhöhe von 30mm bis 40mm. Durch die Linse 3, eine ebene Retardierungslinse im Auffängerteil, wird die Linienhöhe auf etwa 3mm reduziert.

2.4.2. Das Beschleunigungssystem

Die Caesiumionenquelle besitzt eine räumlich feste Emissionsfläche, die durch die Oberseite des Molybdänemitters gegeben ist. Dadurch haben wir die Möglichkeit, ein Beschleunigungssystem zu konstruieren, bei dem die Emissionsdaten keinen Einfluß auf dessen Geometrie haben. Bei fester Elektrodenanordnung wird die Feldverteilung noch von der Raumladung der Ionen beeinflußt. Wir können die Raumladungsabstoßung der Ionen durch eine Raumladungsfeldstärke E_{RL} beschreiben. Für ein rundes, schlankes Ionenbündel erhalten wir z.B. nach [ROTKLE 55]

$$E_{RL} = \frac{j \cdot r}{2v \cdot \varepsilon_o}$$

Nach Walcher [WAL 51] können wir die Strahlaufweitung auf einem kurzen Wegstück berechnen

$$\Delta r = \frac{1}{2} \frac{e}{m} \frac{j \cdot r}{\varepsilon_o v} \frac{l^2}{v^2}$$

mit e/m spez. Ladung des Ions; v Ionengeschwindigkeit;
und können schließlich, um zu einer optischen Beschreibung zu gelange daraus eine Raumladungsbrechkraft φ_{RL} definieren:

$$\varphi_{RL} = - \frac{e}{m} \frac{j}{\varepsilon_o v} \frac{l}{v^2}$$

Die Raumladung des Strahles hat die Wirkung von Zerstreuungslinsen, sofern die Definitionsgleichung einer optischen Linse erfüllt ist:

$$\Delta u = r \cdot \varphi$$

mit $$\frac{\partial \varphi}{\partial r} = 0$$

Δu ist die Winkelumlenkung eines Strahls der Einfallshöhe r
φ ist die Brechkraft der Linse.

Daraus ergibt sich für die Verteilung der Raumladung im Ionenbündel die Bedingung

$$\frac{\partial j}{\partial r} = 0$$

Ist diese Bedingung erfüllt, so wirkt die Raumladung als öffnungsfehlerfreie Linsenanordnung und kann zur optischen Abbildung ausgenutzt werden oder durch andere optische Linsen bei der Abbildung in

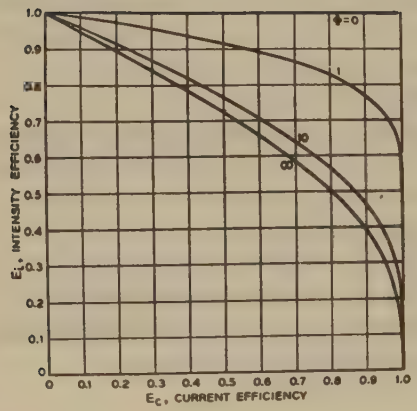

Fig. 2.12. Der Zusammenhang von Stromausbeute E_C und Stromdichtenausbeute E_i nach Pierce PIE 54 .

Der Parameter Ø ist das Verhältnis der Beschleunigungsenergie eines Ions zur mittleren thermischen Anfangsenergie.

ihrer Wirkung kompensiert werden. Bei der Konstruktion des Beschleunigungssystems müssen wir dafür sorgen, daß darum die obige Bedingung erfüllt wird, d.h. daß wir eine möglichst homogene Stromdichtenverteilung im Ionenbündel erhalten.

Wir können die Emission der Ionen aus dem Emitter folgendermaßen beschreiben: Von jedem Flächenelement des Emitters gehen Teilbündel aus mit einer Teilbündelachse und einer Geschwindigkeitsverteilung der Ionen um diese Achse. Das Ionenbündel besteht aus der Überlagerung der Teilbündel. Wir können unsere Bedingung erfüllen, wenn wir

1. Für gleiche Stromstärke aller Teilbündel

und 2. für einen homozentrischen Verlauf der Teilbündelachsen sorgen.

Damit wird unsere Bedingung für den gesamten Querschnitt des Bündels bis auf ein Randgebiet von der Größenordnung eines Teilbündeldurchmessers in dieser Ebene, erfüllt.

Eine weitere Frage, die bei der Konstruktion des Beschleunigungssystems zu klären ist, betrifft die Verwendung von Blenden. Primär wird der Emitterrand als Luke wirken und die Emitterebene wird die Apertur bei der Emission auf maximal 90° begrenzen. Jede weitere Abblendung ist mit einem Verlust von Ionen verbunden und reduziert die Transmission und damit den Gesamtwirkungsgrad.

Ist die Emission am Rande des Emitters stark gestört, so kann eine zusätzliche Luke nützlich sein, um auf Kosten der Ausbeute das Auflösungsvermögen zu steigern. Noch günstiger erscheint in diesem Falle die Verwendung einer Aperturblende, da nach der Beschleunigung die Stromdichteverteilung im Teilbündel auf Grund der Anfangsenergie der Ionen stark inhomogen ist und bei geringen Stromverlusten der Teilbündeldurchmesser stark reduziert werden kann. Führen wir die Stromausbeute E_c und die Stromdichteausbeute E_i ein, so erhalten wir in unserem Falle, wo die Beschleunigungsenergie der Ionen groß gegen ihre thermische Anfangsenergie ist nach Langmuir [MOT LAN 27] und Pierce [PIE 54] einen Zusammenhang zwischen diesen beiden Werten, der bei der Abblendung gilt. Fig. 2.12. zeigt, daß bereits bei einer Wegblendung von 20% des Stromes eine mittlere Stromdichte von 50% des Maximalwertes erreicht werden kann.

Für die Konstruktion des Beschleunigungssystems kann man verschiedene Methoden wählen:

a) man kann experimentell ein System entwickeln
b) man kann ein System berechnen, wobei man entweder mit einem

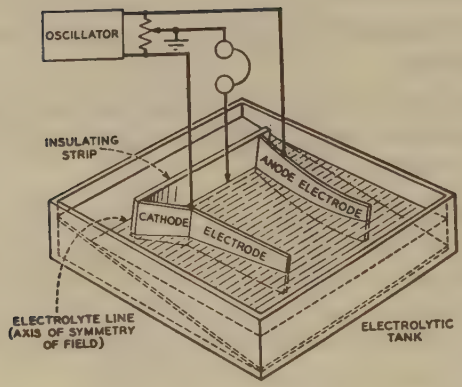

Fig. 2.13. Experimenteller Aufbau zur Messung im elektrolytischen Trog aus PIE 54 .

Durch Spiegelung an der Wasseroberfläche und am Boden wird der Keilwinkel des Troges näherungsweise zum Vollkreis ergänzt. Achse ist dabei die Schnittkante von Wasseroberfläche und dem geneigten Boden des Troges. Mit einer Sonde und einer Kompensationsschaltung läßt sich das Feld zwischen den beiden Elektroden ausmessen. Der Rand des Ionenbündels, an dem die Normalkomponente der Feldstärke Null sein soll, wird durch einen Isolatorstreifen nachgebildet. Die Elektroden werden soweit verformt, bis entlang des Strahlrandes die gewünschte Feldverteilung erreicht ist.

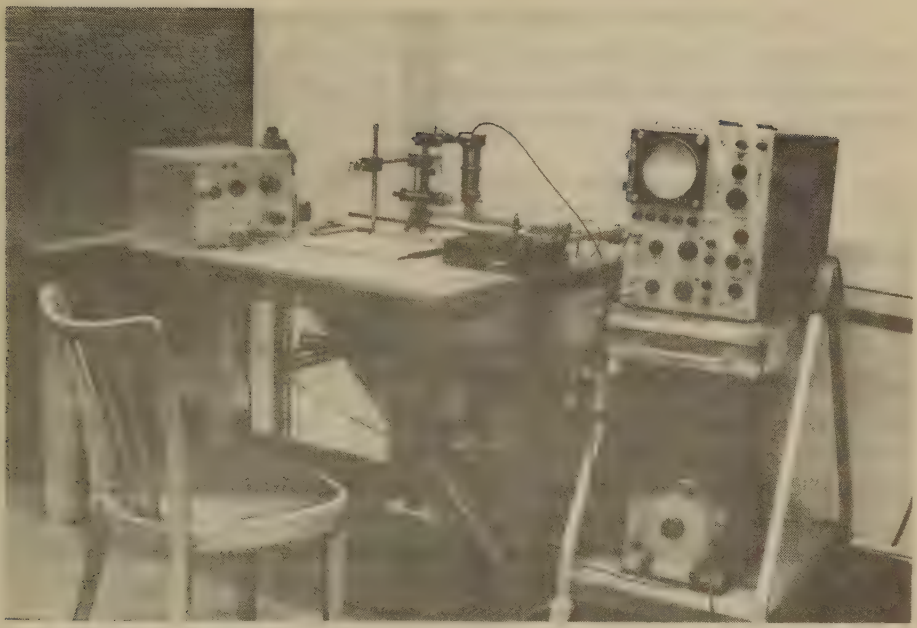

Fig. 2.14. Foto eines Messplatzes für Messungen am elektrolytischen Trog aus KOE 67 .

Spannungsquelle ist ein RC-Generator, während ein Oszillograf zum Nullabgleich dient. Auf dem Tische befinden sich Meßinstrumente für die Elektrodenspannungen und im Gehäuse die Kompensationsschaltung. Hinter dem Tisch befindet sich der elektrolytische Trog. Die Position der verschiebbaren Meßsonde wird über einen Zeiger auf Millimeterpapier übertragen, das auf dem Tische liegt.

Komputer Bahnberechnungen durchführt oder versucht, eine analytische Lösung zu finden.

Wir haben das letzte Verfahren angewendet, weil es da für eine erprobte Methode in der Elektronenoptik gibt, die Konstruktion der Elektronenkanonen nach Pierce [PIE 54].

Strahlensysteme nach Pierce

Das elektrische Feld einer Raumladungsströmung kann nach Langmuir bei einigen Fällen einfacher Symmetrie berechnet werden:

a) Parallelstrahl [LAN 13]
b) Strömung zwischen zwei konzentrischen Zylindern [LAN BLO 23]
c) Strömung zwischen zwei konzentrischen Kugeln [LAN BLO 24]

Der Fall c) ist für uns von Bedeutung. Nach [LAN BLO 24] ist somit die Feldverteilung sowohl für den konvergenten Strahl, als auch für den divergenten Strahl bekannt. Das Verfahren von Pierce erlaubt nun auf experimentellem Wege eine Elektrodenanordnung zu finden, die eine elektrische Feldverteilung im Raume außerhalb des Strahles bewirkt, die am Strahlrand in die Feldverteilung des RL-Stromes übergeht. Die Elektrodenform wird solange geändert, bis das Model im elektrolytischen Trog die gewünschte Potentialverteilung am Strahlrand zeigt, siehe Fig. 2.13. und Fig. 2.14. Ein solches System wird gekennzeichnet durch die folgenden Daten:

a) das Radienverhältnis der beiden Kugelschalen
b) den Öffnungswinkel des Strahls.

Aus diesen Größen läßt sich die Perveanz des Systems berechnen

$$P_e = \frac{I^+ \left(\frac{m^+}{m^e}\right)^{1/2}}{(U_B)^{3/2}}$$

I^+ Ionenstrom
m^+ Ionenmasse
m^e Elektronenmasse
U_B Beschl. Spannung

Die Perveanz ändert sich nicht, wenn die absolute Größe der Radien verändert wird. Der Maßstab, in dem das System gebaut wird, kann frei gewählt werden. Aus den Berechnungen von Pierce ergeben sich die Lage und der Durchmesser des engsten Strahlquerschnittes. Divergente Systeme sind in der Elektronenoptik ungebräuchlich und im zitierten Werk von Pierce nicht behandelt.

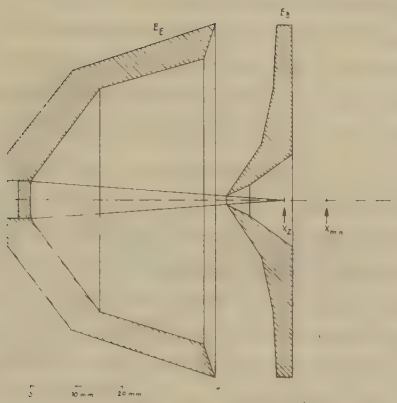

Fig. 2.15. Ein Beschleunigungssystem, das mit Hilfe des elektrolytischen Troges nach Pierce konstruiert wurde. Der maximale Ionenstrom bei einer Beschleunigungsspannung von 20 kV beträgt 40 uA. E_e ist die Emitterelektrode, E_B die Beschleunigerelektrode. X_Z ist der gemeinsame Mittelpunkt der Kugelschalen, X_{MIN} ist die Position des engsten Querschnittes des Ionenbündels.

In Fig. 2.15. sind der Strahlengang für ein Pierce-System gezeichnet, und das Elektrodensystem, das im elektrolytischen Trog bestimmt wurde. Der Overcross wird nicht realisiert. Daran ist die Zwischenabbildung durch die Linsenwirkung der Öffnung und durch die RL-Brechkraft Schuld. Beide Effekte wirken in gleicher Richtung und verlagern den Overcross vom Mittelpunkt der beiden Kugelschalen in Laufrichtung über Unendlich in negative oder sogar wieder in positive Gebiete der Abbildung. In vielen Fällen, wie auch in unserem Beispiel, ist jedoch schon die Strahlverengung klein gegen die Emissionsfläche, und eignet sich daher als Position für eine Aperturblende. Da jedoch diese Ebene nicht mit dem Ort des Overcross übereinstimmt, ist die Blende zugleich als Luke wirksam, in dem Sinne, daß eine Vignettierung eintritt, die z.B. die Teilbündel stärker abblendet, die von Randgebieten der Emissionsfläche herrühren.

Die Bündelverengung wird oft als Overcross bezeichnet. Wenn wir unter Overcross die Stelle bezeichnen wollen, an der die Achsen der Teilbündel die optische Achse schneiden, so ist die Bündelverengung nicht notwendig mit dem Overcross identisch und sollte darum auch getrennt behandelt werden. Verwendet man keine Blenden, so sollte man den Overcross in die Auffängerebene des Separators abbilden, weil man so die höchsten Stromdichten erhält. Dabei entsteht ein verknüpfter Strahlengang, bei dem gewisse Funktionen vertauscht sind. Hatten wir z.B. an der Emissionsfläche gleiche Flächenstromdichte und eine anisotrope Dichteverteilung in den Teilbündeln, so erhalten wir bei der Abbildung der Pupille, das ist hier der Overcross, eine inhomogene Flächenstromdichte in der Pupillenebene und innerhalb eines Grenzwinkels isotrope Dichteverteilung der neuen Teilbündel.

Das divergente Beschleunigungssystem.

Obwohl es in der Elektronenoptik nicht gebräuchlich ist, verspricht es beim Separator einige Vorteile. Es vermeidet die starken Bündelverengungen mit dem Gebiet hoher RL-Dichte. Da in diesem Gebiet zugleich die RL-Dichte im Bündel sehr inhomogen ist, wird dort unsere Bedingung 2 nicht erfüllt und wir erhalten einen großen Öffnungsfehler, den somit das divergente System vermeidet. Es erscheint daher für die Erzeugung stromstarker Ionenbündel im Separator vorteilhaft. Problematisch ist die Rückwirkung der Öffnung in der Beschleunigungselektrode auf das Beschleunigungsfeld und auf die Emission. Einen Ansatz für die Reduktion dieses Effektes geben die Untersuchungen von Brewer [BRE 57] an konvergenten Systemen hoher Perveanz.

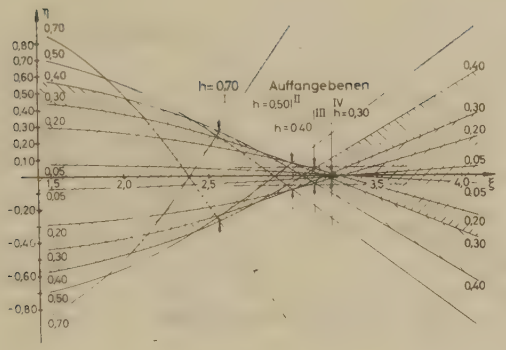

Fig. 2.16 Der Öffnungsfehler der ebenen Linse L3, dargestellt an Hand von berechneten Ionenbahnen verschiedener Einfallshöhen aus BAU 65 .

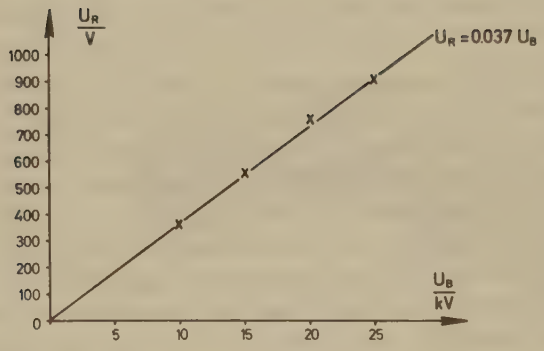

Fig. 2.17. Die optimale Retardierungsspannung in Linse L3.

Die höchste Stromdichte am Auffänger wurde bei einer Retardierungsspannung U_R erreicht, die 3,7% der Beschleunigungsspannung U_B der Ionen betrug.

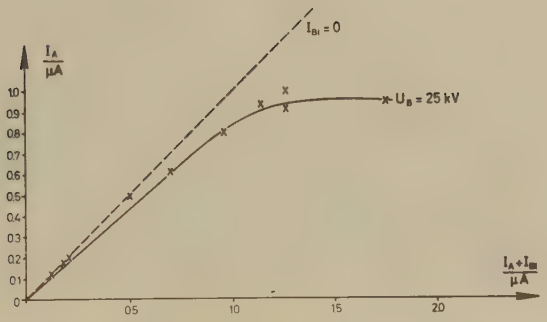

Fig. 2.18. Der Auffängerstrom als Funktion vom Gesamtionenstrom.

Während der Messung war die optimale Retardierungsspannung nach Fig. 2.17 eingestellt. Nach einem linearen Anstieg geht der Auffängerstrom in einen Sättigungswert I_A^{max} über.

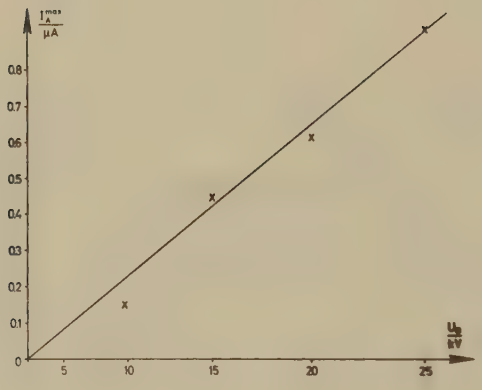

Fig. 2.19. Der maximale Auffängerstrom I_1^{max} nach Fig. 2.18. als Funktion der Beschleunigungsspannung, die hier in einer $U^3/2$ -Teilung aufgetragen ist.

2.4.3. Die ebenen Linsen L2 und L3.

Die Linsen L2 und L3 sind nach Uhler [UHL 63] entworfen worden. Betrachten wir zuerst die Linse 3 in Fig. 2.11. Sie hat in Näherung die gleiche Feldverteilung wie die zwei unendlich ausgedehnten Plattenpaare in Fig. 2.16. mit den Potentialen $-U_B$ und $-U_R$. In Fig. 2.16. sind einige Ionenbahnen eingezeichnet, die mit Hilfe eines Elektronenrechners bestimmt wurden [BAU 65]. Man erkennt, daß diese Linse einen großen Öffnungsfehler hat und daß man deshalb nur schmale Ionenbündel abbilden kann. Durch eine Zwischenabbildung mit Linse 2, eine ebene Einzellinse wurde nun die Höhe des Ionenbündels reduziert, das in die Linse 3 eintritt. Mit dieser Anordnung wurden folgende Eigenschaften der Linse 3 gefunden:

1. Bei fester Geometrie erhält man ein festen Verhältnis zwischen der Beschleunigungsspannung U_B und der Retardierungsspannung U_R, wenn man jeweils mit der Retardierungsspannung den maximalen Auffängerstrom einstellt. Stellt man die optimale Geometrie ein, die unabhängig von der Beschleunigungsspannung ist, so erhält man die in Fig. 2.17. aufgetragene Abhängigkeit der optimalen Retardierungsspannung U_R von der Beschleunigungsspannung U_B, ein lineares Verhältnis.

$$U_R^o = c_o U_B$$

2. Erhöht man bei fester Geometrie den Ionenstrom, so steigt nach Fig. 2.18. der Auffängerstrom I_A zuerst linear an und geht dann in einen konstanten Maximalwert I_A^{max} über, so daß eine weitere Gesamtstromerhöhung nur den Blendenstrom I_B steigert.

3. Der maximale Auffängerstrom I_A^{max} ist nach Fig. 2.19. proportional zu $U_B^{3/2}$ und auch zu $(U_R^o)^{3/2}$.

$$I_A^{max} = P_B U_B^{3/2}$$

$$I_A^{max} = P_R U_R^{3/2}$$

Diese experimentell gefundenen Beziehungen werden zur Zeit durch ionenoptische Bahnberechnungen untersucht. Die exakte Feldverteilung für diese Rechnung wird dabei durch einen neuen elektrolytischen Trog hoher Präzision bestimmt [KOE 67].

2.5. Der Strahlenschutz

2.5.1. Kontaminierungen.

Unsere Planung stützte sich auf die Erfahrungsberichte der Arbeitsgruppen an den elektromagnetischen Isotopenseparatoren in Oak Ridge, U.S.A., und Harwell, Grossbritannien [LOV 61]; [ILR 61]

Bei der Trennung von radioaktivem Material wird das Innere des Trenners kontaminiert. Nach [ILR 61] finden sich z.B. nach der Trennung folgende Verteilung der Rest-aktivität im Hermes:

Ionenquelle 40%
Ionenquellentopf.....40%
Laufrohr.....10%
Übrige Anlage.....10%

Auffallend ist, daß nur sehr wenig radioaktives Material in die Pumpen gelangt. Die Aktivität im Laufrohr sitzt eingeschossen in die Wände und kann nur durch Abtragen der oberen Metallschichten entfernt werden. Beim Betrieb des Trenners sind folgende regelmäßig wiederkehrenden Arbeiten nötig, bei denen das kontaminierte Innere des Trenners mit der Aussenwelt in Verbindung kommen kann:

1. Einfüllen der Charge
2. Ausbau des Auffängers
3. Wartung der Ionenquelle
4. Dekontamination des Trenners.

Außerdem besteht immer, wenn mit einem nicht abgeschlossenen Pumpensystem gepumpt wird, die Möglichkeit, daß Aktivität durch die Pumpen in die Außenwelt gelangt. Nach den vorliegenden Erfahrungen tritt das jedoch bei der Trennung von festen Substanzen nicht ein. Bei den aufgezählten Arbeiten kann eine Verbreitung der aktiven Substanz erfolgen durch

1. Gaskontamination
2. Staubkontamination
3. Tropfenkontamination
4. Sekundäre Kontamination.

Die Gaskontamination spielt eine Rolle, wenn der Dampfdruck der aktiven Substanz und die spezifische Aktivität hoch genug sind, um zu einer Aktivitätsdichte im Gasraum zu führen, die die maximal zulässige Aktivitätskonzentration in Luft überschreitet [IAE 67]. Bei den von uns bisher durchgeführten Trennungen spielte dieser Effekt keine Rolle

Die Staubkontamination ist schwer zu entdecken und schwer zu beseitigen. Staubförmiges aktives Material kann bereits durch Luftbewegungen weiter verbreitet werden. Die Operateure sind dadurch besonders gefährdet, daß durch Inhalation eine Inkorporation erfolgen kann, die sich sehr schwer rückgängig machen läßt.

Bei der Tropfenkontamination, die nicht nur bei der Verwendung von flüssigen Trennchargen, sondern auch bei der feuchten Dekontamination durch gelöste, aktive Feststoffe auftreten kann, treten meist auf kleinen Flächen hohe Quellstärken auf. Solche Stellen sind leicht zu entdecken, aber nicht immer leicht zu dekontaminieren. Entscheidend ist die Porosität der Unterlage [LOV 61] berichten davon, daß bei Dekontaminationen dieser Art bis zu 5 cm Beton entfernt werden mußten. Die sekundäre Verseuchung (cross contamination) erfolgt durch die Menschen im Arbeitsraum. Nach einer primären Kontamination nach 1. 2. und 3. wird durch Kontakt radioaktives Material mit der Schutzkleidung - meist mit den Schuhsohlen - aufgenommen und im Raum verbreitet. Die laufenden Kontrollen der Handschuhe und Schuhsohlen ergeben so meist den ersten Hinweis auf eine Kontamination. Kann dann nicht sofort eine Dekontamination des Raumes erfolgen, so ist in kurzer Zeit eine große Fläche durch sekundäre Verseuchung kontaminiert.

Um die Kontamination unter Kontrolle zu halten und auf definierte Räume zu beschränken sind [LOV 61] [ILR 61] folgende Vorschläge gemacht worden:

1. Begrenzung der Kontamination auf das Separatorinnere, auf Transportgefäße und Handschuhkästen.
2. Begrenzung der Kontamination auf den gesamten Separator und den Raum, in dem der Separator steht. Dabei werden
   a) alle Arbeiten an aktiven Teilen im Raum unter Verwendung von Überdruckschutzanzügen durchgeführt,
   b) ein Teil der Arbeiten an aktiven Teilen in Handschuhkästen durchgeführt, die einen Eingriff von einem zweiten Raum haben, der inaktiv ist und ohne hinderliche Schutzkleidung betreten werden darf.

Methode 1 entspricht dem Wunsch nach einem minimalen kontaminierten Raum und nach Arbeitsmöglichkeit ohne Schutzkleidung. Jedoch die Erfahrungen von Oak-Ridge [LOV 61] zeigen, daß trotz aller Vorbereitungen Kontaminationen außerhalb der vorgesehenen Behälter auftreten können. Daraus ergibt sich die Forderung, daß der Raum, in dem der Trenner steht, als aktiver Raum behandelt werden muß. Bei den Trans-

porten aktiver Teile von einem Behälter in den anderen oder in den Separator müssen wegen der Unmöglichkeit eine Kontamination sofort zu bemerken (wegen des hohen Strahlungsuntergrundes beim Trenner), dieselben Schutzmaßnahmen angewendet werden, wie in einem kontaminierten Gebiet. Durch eine Endkontrolle nach Abschluß der gefährlichen Transporte kann der Raum nach einer evt. notwendig gewordenen De kontamination wieder für ein Arbeiten ohne hinderliche Schutzkleidung freigegeben werden.

Methode 2 ist nur dann günstig, wenn der Trenner für Großtrennungen einer Substanz eingesetzt wird und die Arbeiten am Trenner selbst gering sind im Vergleich zu den reinen Trennzeiten. Um einen Arbeiter am Hermes [ILR 61] in den radioaktiven Separatorraum einzuschleußen oder wieder heraus sind 20 Minuten Zeit nötig.

Wir haben uns gemäß diesen Überlegungen für die erste Methode entschieden. Wir haben durch Fernbedienungen das Bedienungspult des Separators in einen inaktiven Raum verlegen können. Durch große Fenster können von dort aus der Separator und die Leute, die am Separator arbeiten beobachtet werden. Der aktive Bereich ist nach Möglichkeit dicht gegen den inaktiven Bereich abgegrenzt. Eine Luftströmung durch die verbleibenden Spalte aus dem aktiven Gebiet soll durch einen Unterdruck in diesem Gebiet von einigen mm-Wassersäule verhindert werden.

Fig. 2.20. Der radioaktive Labortrakt des neuen Separators und der angeschlossenen optischen Abteilung.

Die Gebiete, in denen mit offenen radioaktiven Quellen gearbeitet wird, sind durch eine Perlschnur von den übrigen Laboren abgetrennt. Sie sind für Unterdruckbetrieb vorbereitet. (1) ist das radioaktive Trennerlabor, (11) ist das radioaktive optische Labor. (10) ist ein Kontrollraum und (12) ist die Luftschleuse für den Unterdruckbetrieb. (13) ist ein Ventilator, mit dessen Hilfe ein Unterdruck von einigen Millimetern Wassersäule erzeugt werden kann.

2.5.2. Der radioaktive Labortrakt.

Der radioaktive Arbeitsbereich ist in Fig. 2.20. dargestellt und umfaßt

das aktive Separatorlabor (1)
den Vorraum (10)
und das aktive Optiklabor (11)

Er ist durch die Luftschleusse (12) mit dem inaktiven Bereich verbunden. Im inaktiven Bereich befinden sich der 20kV-Trenner (17) und der optische Spektralapparat (14). Durch einen Ventilator mit Luftfilter (13) soll im aktiven Bereich ein Unterdruck von einigen mm Wassersäule erzeugt werden. Das radioaktive Separatorlabor enthält den 50kV Separator mit Ionenquelle (2), Magnet (3) und Auffänger (4) sowie eine Bleiburg (5) zur Verwahrung von Quellen, einen Handschuhkasten (6) für Montagearbeiten, und den ölgefüllten Gleichrichterteil (7) der Hochspannungsanlage.

Der inaktive Bereich enthält u.a. das Bedienungspult für den aktiven Trenner (15), die Ionenquellenversorgung (19), die elektronischen Stabilisierungen (24), und die Druckmessinstrumente (20). Vom Bedienungspult (15) ist ein Überblick über den aktiven Trenner und das zugehörige Labor durch die Fenster (8) und (9) möglich.

2.5.3. Die Strahlenbelastung der Operateure.

Die Tabelle 2.2. nennt die einzelnen Trennungen und ihre Aufgaben. Die Quellstärke einer Charge stieg bei den Experimenten (Spalte 4) um einen Faktor 10^6 an. Ein anschauliches Maß für die Quellstärke einer Charge ist in Spalte 4 gegeben. Dort ist die Quellstärke durch die Aktivitätsfreigrenze geteilt worden. Um die biologische Gefährlichkeit der verschiedenen Cäsiumchargen zu vergleichen, ist in Spalte 10 das Produkt von Quellstärke und Ionendosiskonstante (Spalte 8) angegeben. Bei der Cäsium 134 Trennung wird der höchste Wert erreicht. Die Cs131 Trennung fällt trotz hoher Aktivität wegen der geringen Gammaenergie ab.

Die Tabelle 2.3.gibt einen Überblick über die Arbeitsgänge bei einer Trennung. In Spalte 2 sind Arbeitsraum und Behälter genannt, in denen sich die Quelle befindet. Neben der Gesamtdauer des Arbeitsganges (Spalte 3) werden dieexponierten Körperteile, der geringste Abstand zur Quelle, und die Expositionszeit aufgeführt. Für die fünf Cs134 Trennungen ergibt sich eine Gesamtdosis von 1,4r für die Hand und 100 mr für den Kopf des Experimentators, wobei der größte Teil der Strahlenbelastung trotz Ablösung auf einen Operateur entfällt.

Tabelle 2.4. enthält die aufgenommene Ionendosis der beiden Operateure in der Zeit vom Herbst 1965 bis Herbst 1966, und vom Herbst 1966 bis zum Herbst 1967. Die Messungen wurden mit Hilfe von Victoreen Taschendosimetern Typ 362 vorgenommen und vom Strahlenschutzassistenten des Instituts ausgewertet. Die angegebene Fehlergrenze ergibt sich aus der Ablesegenauigkeit. Die zugleich erfolgte Kontrolle mit Filmplaketten, die durch die amtliche Auswertestelle in Neuherberg vorgenommen wurde, ergab monatliche Dosen unter 40 mr in 50% der Ablesungen im Zeitraum 1 und in 66% der Ablesungen im Zeitraum 2. Allerdings ist dabei die Messgenauigkeit nicht sehr hoch*).

*) Bei den nicht angekündigten Kontrollen durch geeichte Bestrahlung [EGE 60] ergaben sich Abweichungen bis zu 4.5 nach oben und 25 nach unten. Die Kontrollen der PTB [BRI DRE 64] ergaben für die Zeit 1959-64 14% Ausreißer mit mehr als 50% Abweichung. 1964 allein lagen alle Messungen innerhalb einer Fehlergrenze von ± 50%.

Charge	Versuchsart	Stärkster Strahler	Q_c Quellstärke der Charge	Halbwertszeit	Art der Strahlung	Energie der Strahlung im MeV	Dosiskonstante I $\frac{Cih}{rm^2}$	$\frac{Q_c}{Freigrenze}$	$\frac{Q_c \, je^h}{rm^2}$
Stabiles Caesium und Tracer	Ausbeutemessung	^{137}Cs	1uCi	30a	;	0,66	0,3	0,1	$3\ 10^{-7}$
Spaltcaesium	Abtrennung von ^{135}Cs und ^{137}Cs	^{137}Cs	3mCi	30a	;	0,66	0,3	300	$9\ 10^{-3}$
Aktiviertes Caesium	Abtrennung von ^{134}Cs	^{134}Cs	10mCi	2.1a	;	0,6;0,8	0,7	1000	$7\ 10^{-2}$
Chemisch abgetrenntes Caesium von aktiviertem Barium	Vorversuche ^{131}Cs Trennung	^{131}Cs	1Ci	9.7d		0,04	0,015	10^4	$1,5\ 10^{-2}$
Chem.abgetr. Caesium wie oben	Abtrennung von ^{131}Cs	^{131}Cs	2Ci	9.7d		0,04	0,015	2.10^4	$3\ 10^{-2}$

Tabelle 2.2. Übersicht über die radioaktiven Trennungen.

Arbeitsgang	Aktivität ist im Behälter;Labor	Zeitdauer A	Expon.Körperteile	Geringster Abstand Bestrahlungszeit max.
Aufträufeln	Abzug Rad.Lab.	2 h bis 20 h	Hände; Kopf	0,5 m 5% A
Messung	Meßraum Rad.Lab.	10 min	Gesamtkörper	1 m 10% A
Transport	Plastik; Blei	10 min	Gesamtkörper	0,5 m (starke Abschirmung)
Einbau Emitter	Handschuhkasten; Separ.Lab.	15 min bis 45 min	Hände; Kopf	0,1 m bis 0,5 m 100% A
Einbau Ionenquelle	J.Q; Sep.Lab.	10 min bis 20 min	Hände; Kopf	0,1 m bis 0,5 m 100% A
Einbau Auffänger	Handschuhkasten; Separ.Lab.	10 min bis 20 min	Hände; Kopf	0,1 m bis 0,5 m 100% A
Einbau Linse 3	L3; Sep.Lab.	15 min bis 30 min	Hände; Kopf	0,1 m bis 0,5 m 100% A
Auspumpen	Separator	60 min bis 120 min	Gesamtkörper	5 m 30%
Trennung	Separator	5 h bis 15h	Gesamtkörper	3 m 100%
Abkühlung; Belüftung	Separator	0,5 h	Gesamtkörper	3 m 20%
Ausbau Auffänger	Handschuhk.; Sep.Lab.	15 min	Hände; Kopf	0,1 m bis 0,5 m 100%
Ausbau JQ	Sep.Lab.	15 min	Hände; Kopf	0,1 m bis 0,5 m 100%

Zeitraum	Ionendosis nach Victoreen 362		Ionendosis nach Filmplaketten	Bruchteil der zulässigen Maximaldosis	
	Operatur 1	Operatur 2	Operatur 2	Op. 1	Op. 2
1965 bis 1966	$(0,7 \pm 0,2)$rem	$(0,8 \pm 0,2)$rem	$(1,6 \pm 0,5)$rem	0,14	0,16
1966 bis 1967	$(0,4 \pm 0,1)$rem	$(0,5 \pm 0,1)$rem	$(0,9 \pm 0,5)$rem	0,08	0,1

Tabelle 2.4. Die Strahlungsbelastung der Operateure.

3. Die Untersuchung der Ausbeute.

3.1. Die neue Caesiumionenquelle.

3.1.1. Die Entwicklung der Alkaliionenquellen.

Für die elektromagnetische Isotopentrennung sind neben einer Gasionenquelle [JAC 30] zuerst Alkaliionenquellen verwendet worden [OLI 34], [SMY 38], [WAL 37], [KOC 36]. Sie beruhen auf dem von Langmuir beobachteten Effekt der Ionisierung von Alkaliionen an einer heißen Wolframfläche [KOC 36], [WAL 37], oder dem Abdampfen von Alkaliionen aus gewissen Schmelzen [OLI 34], [SMY 38].

Die von uns verwendete Ionenquelle ist von den Kochschen Alkalianoden abgeleitet worden [KOC 36] und nutzt den Langmuireffekt aus. Walcher hat bereits 1937 [WAL 37] diese Anoden für die Isotopenseparation verwendet und dabei die Leistungsfähigkeit durch eine Regeneriermöglichkeit [WAL 43] erhöht. Einen Endpunkt in der Entwicklung dieser Ionenquellen zu hohen Strömen stellen die Caesiumionentriebwerke dar, die seit einigen Jahren für die Raumfahrt entwickelt werden. Bei ihnen wird ähnlich der von Walcher vorgeschlagenen Regeneration ein stetiger Caesiumdampfstrom aus einem Ofen dem Ionisator zugeführt. Dabei werden Stromdichten von 10 mA/cm2 und Ionisierungsgrade von 97% erreicht [HUS 63].

Für die Trennung der radioaktiven Caesiumisotope sind diese Quellen nicht geeignet. Sie sind für die Ionisierung von Gramm-Mengen von Caesium eingerichtet, während wir bei den radioaktiven Material mit Mikrogrammengen arbeiten müssen. Bei einer geometrischen Verkleinerung gewinnen die Verluste an den Dichtflächen und an den Rändern des Ionisators zunehmend an Bedeutung und führen zu einer schlechten Ausbeute [TRU WOT 65]. Eine Verkürzung der Trennzeit unter Verwendung von hohen Ionenströmen führt wegen der Anheiz- und Justierzeit von einigen Minuten ebenfalls zu unzulässig hohen Verlusten. Aus diesen Gründen wurde bei der Entwicklung unserer Quelle auf den ursprünglichen Kochschen Entwurf zurückgegriffen, bei dem die Charge direkt in die poröse Anode eingebracht wird.

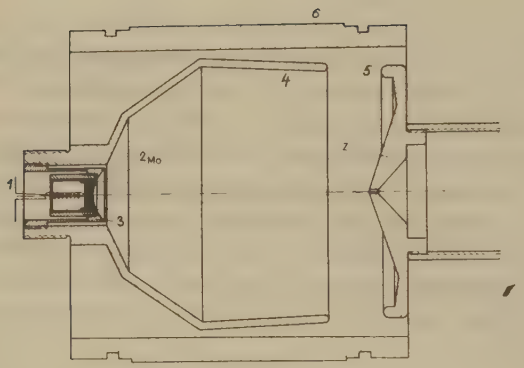

Fig. 3.1. Querschnitt durch die Caesiumionenquelle.

Durch die Heizung (1) wird der Emitter (2) auf die Betriebstemperatur gebracht. Die Emitterhalterung (3) hat einen hohen Wärmeleitwiderstand und dient gleichzeitig zur Definition des elektrischen Feldes am Emitter. Die Emitterelektrode (4) und die Gegenelektrode (5), bestimmen die Feldverteilung in der Beschleunigungsstrecke. Die Elektroden werden von einem Keramikisolator (6) zentriert gehalten.

3.1.2. Der Aufbau der neuen Ionenquelle.

In Fig. 3.1. wird ein Querschnitt durch die Ionenquelle gezeigt. Der Ionisator ist eine poröse Presspille aus Molydänpulver (2). Er wird durch eine Wolframdraht-Heizwendel (1) geheizt. Das beschleunigende elektrische Feld wird durch die Emitterelektrode (4) und die Gegenelektrode (5) definiert. Die Elektroden sind durch ein Keramikrohr (6) aus Degussit Mg 25 zentriert. Der Ionisator (2) hat einen Durchmesser von 8 mm, die Öffnung in der Gegenelektrode (5) einen Durchmesser von etwa 1,2 mm. Bei der Messung der Ionenquellenausbeute wurde hinter dieser Öffnung ein Auffänger befestigt. Während der Trennung sitzt die Quelle zentrisch in der ersten Elektrode der Linse 1. Die Elektroden der Quelle sind aus Edelstahl gefertigt, die Pillenhalterung (3) aus Tantal und Edelstahl. Um die Vakuumverhältnisse zu verbessern sind etwa 60% der Wandfläche des Isolatorrohres herausgesägt.

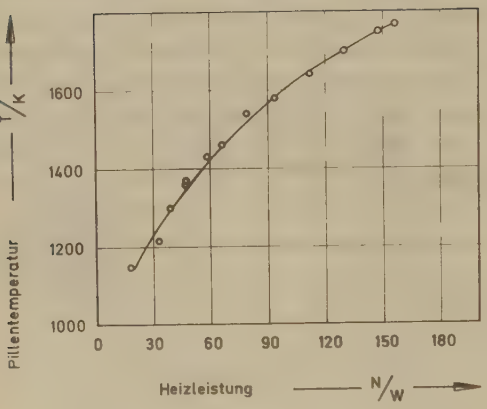

Fig. 3.2. Die Temperatur des Emitters als Funktion der Heizleistung.

Die Messungen wurden mit einem Pyrometer durchgeführt. Die Betriebswerte liegen zwischen 1400°K und 1600°K.

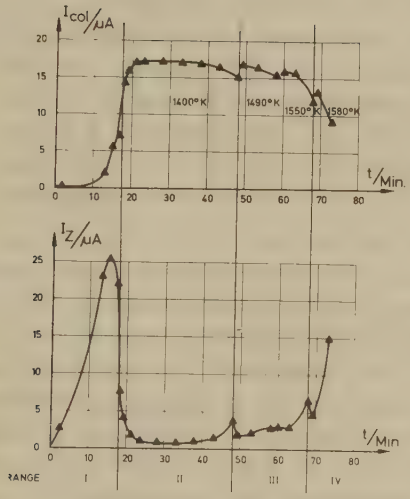

Fig.3.3. Betriebskurven der Caesiumionenquelle.

In der oberen Kurve sind der zeitliche Verlauf des Auffängerstromes I_{col} und die zugehörigen Emittertemperaturen dargestellt.

In der unteren Kurve ist der Strom I_z zur Gegenelektrode in Abhängigkeit der Zeit aufgezeichnet.

3.1.3. Der Betrieb der Ionenquelle.

Die Charge wird als Caesiumsulfat in wässriger Lösung auf den porösen Emitter aufgeträufelt. Die verwendete Lösung enthielt bekannte Mengen von Caesium 133 und von Caesium 137, das als radioaktiver Tracer dient. Über die Mengenbestimmung mit Hilfe des Tracers wird später berichtet. Nach der Füllung wird der Emitter, auch Pille genannt, in die Ionenquelle eingesetzt, und diese in den Trenner eingebaut. Der Betrieb der Quelle erfolgt bei einem Restgasdruck zwischen 5 und 50 Mikrotorr. Die Gegenelektrode (Fig.3.1.) liegt auf Erdpotential, die Emitterelektrode mit Ionisator und Heizung hat gegen Erde eine positive Spannung von 20 bis 30 kV. Durch die Heizwendel wird der Ionisator hochgeheizt. Die Pillentemperatur als Funktion der Heizleistung ist in Fig. 3.2. dargestellt. Durch verschiedene Justierungen der Wendel zur Pillenhalterung können bei gleicher Heizleistung Abweichungen bis zu 100° K bei den einzelnen Pillen gegenüber der Messkurve auftreten. Beim Betrieb der Quelle werden außer der Heizleistung, die Beschleunigungsspannung, der Restgasdruck, der Auffängerstrom und der Strom auf die Gegenelektrode oder Gesamtemissionsstrom gemessen.

Fig. 3.3. zeigt als Beispiel für den Betrieb der Quelle den zeitlichen Verlauf vom Auffängerstrom I_{Co} und vom Strom auf die Gegenelektrode I_Z bei einer speziellen Trennung. Die Pillentemperaturen, die sich aus der gemessenen Heizleistung und der Fig. 3.2. ergeben, sind in die Kurve geschrieben. Nach einer Anheizzeit, in der der Ionenstrom auf die Gegenelektrode läuft, ist bei einer Pillentemperatur von etwa 1400°K ein stabiler Betriebszustand erreicht, in dem der Strom zur Gegenelektrode gegen Null geht und der Auffängerstrom konstant ist. Dann beginnt der Auffängerstrom zu sinken, der Gegenelektrodenstrom zu steigen. Für eine gewisse Zeit läßt sich diese Entwicklung durch Erhöhung der Heizung unterdrücken, jedoch schließlich sinkt der Ionenemissionsstrom ab. Dadurch nimmt die Raumladung im Bündel ab und die Abbildung in der Beschleunigungsstrecke ändert sich, so daß ein größerer Anteil des Ionenstroms auf die Gegenelektrode statt in den Auffänger gelangt. Die auf der Gegenelektrode ausgelösten Sekundärelektronen können nicht zurückgehalten werden, weil sie von dem Beschleunigungsfeld auf Emitter und Emitterelektrode gezogen werden. Sie erhöhen den Strom I_Z und täuschen eine Ionenstromerhöhung vor. Nach einiger Zeit, die von dem Gehalt der Pille an anderen Alkalien abhängt, sinken alle Ströme auf Null ab. Die Tracermessungen haben gezeigt, daß bereits zu Beginn die Zeitabschnitte IV in Fig. 3.3. der Caesiumgehalt der

Charge bis auf einen Rest von einigen Mikrogramm verdampft ist. Nach dem Abkühlen und Belüften werden die Caesiummengen im Auffänger und der Rest im Emitter mit Hilfe des Tracers bestimmt.

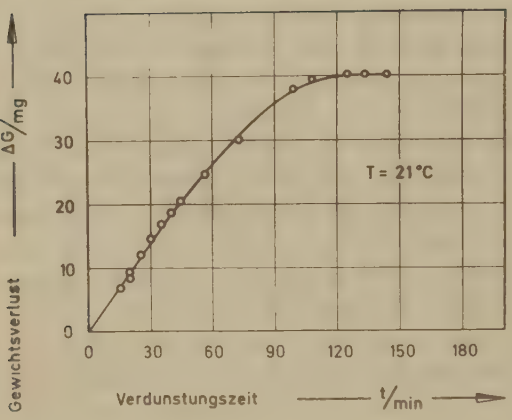

Fig.3.4. Der Gewichtsverlust einer feuchten Pille durch Verdunstung.

Als Beispiel einer möglichen Fehlerquelle bei der Massenbestimmung durch Wägung ist hier der Gewichtsverlust einer feuchten Pille durch Verdunstung des Wassers aus der Träufellösung aufgezeichnet.

3.2. Ausbeutemessungen an der Cäsiumionenquelle.

3.2.1. Die Meßmethode.

Die Ausbeute der Ionenquelle η_Q ist definiert als das Verhältnis

$$\eta_Q = \frac{\text{Masse der hinter der Quelle aufgef. Cäsiumionen}}{\text{Masse der in der Quelle verbrauchten Cäsiumcharge}}$$

Bei der Geometrie von Quelle und Auffänger liegt der Anteil des Neutralteilchenstromes, der in den Auffänger gelangt unter 1%. Im untersuchten Bereich hoher Ausbeute spielt dieser Beitrag daher keine Rolle, und wir betrachten die gesamte im Auffänger gesammelte Cäsiummenge als vom Ionenstrom herrührend. Die bei diesen Untersuchungen zu bestimmenden Cäsiummengen liegen zwischen einigen Milligramm und einigen Mikrogramm. Eine Bestimmung der Chargenmenge durch Wägung stößt auf eine prinzipielle Schwierigkeit. Das Cäsium wird als Sulfat in wässriger Lösung aufgetragen. Während der Präparation verdampft ein Teil des Wassers und verfälscht so die Wägung. Fig. 3.4. zeigt zur Veranschaulichung dieses Effektes den Gewichtsverlust einer feuchten Ionisatorpille bei Zimmertemperatur als Funktion der Zeit.

Außer durch Verdunstung kann sich die Cäsiumkonzentration in der Lösung auch durch Ionenaustausch des Cäsiums mit Alkaliionen aus dem Glass des Behälters oder der Pipette, die zum Beträufeln dient, erfolgen.

Noch problematischer ist die Bestimmung der aufgefangenen Cäsiummenge. Sie kann um ein bis zwei Größenordnungen kleiner sein als die Chargenmenge. Sie enthält das Cäsium in einer unbekannten Verbindung. Wird der Ionenstrom ohne Massentrennung aufgefangen, so kann eine Verfälschung durch andere Alkaliionen auftreten, wird der Ionenstrom im Massenseparator diskriminiert, so hängt die Transmission des Trenners sowohl von Betriebsgrößen der Ionenquelle als auch des Trenners ab. Wegen dieser Schwierigkeiten wurden die Mengenbestimmungen nicht durch Wägung oder Messung des Strom-Zeit-Integrals ausgeführt, sondern mit einer Tracertechnik, die im Folgenden beschrieben wird.

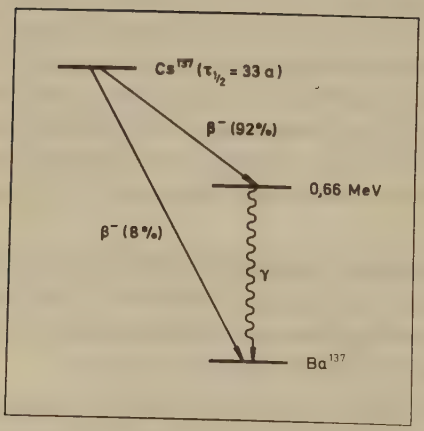

Fig. 3.5. Das Zerfallsschema des als Tracer verwendeten Isotops ^{137}Cs.

3.2.2. Der Tracer.

Eine Stammlösung enthält neben einer bekannten Caesium-133 Menge als Cs_2SO_4 eine ebenfalls bekannte Menge Caesium-137 in der selben Verbindung. Das Caesium-137 zerfällt nach Fig. 3.5. Dabei wird in 92% der Zerfälle ein γ-Quant von 660 keV ausgesendet. Aus der gemessenen Quellstärke einer Teilmenge der Stammlösung läßt sich der Caesium-137 Gehalt und über das Mischungsverhältnis der Stammlösung der Caesium-133 Gehalt bestimmen. Ein Mischungsverhältnis Cs-137 : Cs-133 = 1 : 10^4 reicht bereits aus, um noch Mikrogrammengen von Cs-133 zu bestimmen. Die Tracertechnik setzt voraus, daß keine Änderung des Mischungsverhältnisses der beiden Caesiumisotope während der betrachteten Prozesse erfolgt. Diese Forderung ist bei unseren Untersuchungen hinreichend gut erfüllt, außer bei der Isotopenseparation selbst.

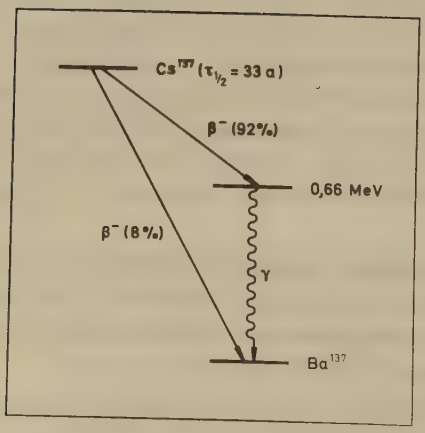

Fig. 3.5. Das Zerfallsschema des als Tracer verwendeten Isotops ^{137}Cs.

3.2.2. Der Tracer.

Eine Stammlösung enthält neben einer bekannten Caesium-133 Menge als Cs_2SO_4 eine ebenfalls bekannte Menge Caesium-137 in derselben Verbindung. Das Caesium-137 zerfällt nach Fig. 3.5. Dabei wird in 92% der Zerfälle ein γ-Quant von 660 keV ausgesendet. Aus der gemessenen Quellstärke einer Teilmenge der Stammlösung läßt sich der Caesium-137 Gehalt und über das Mischungsverhältnis der Stammlösung der Caesium-133 Gehalt bestimmen. Ein Mischungsverhältnis Cs-137 : Cs-133 = 1 : 10^4 reicht bereits aus, um noch Mikrogrammengen von Cs-133 zu bestimmen. Die Tracertechnik setzt voraus, daß keine Änderung des Mischungsverhältnisses der beiden Caesiumisotope während der betrachteten Prozesse erfolgt. Diese Forderung ist bei unseren Untersuchungen hinreichend gut erfüllt, außer bei der Isotopenseparation selbst.

Messung vom:	Gültig von bis	k_P	k_H	$\frac{k_P}{k_H}$	$\frac{k_H}{k_P}$
8. 7.1964	6. 5.64 - 2.10.64	1.44	1.54	1.33	1.17 ± 0,02
1.11.1964	2.10.64 - 20. 4.65	1.13	1.23	1.10	1.11 ± 0,04
15.12.1965	22. 4.65 - 6. 1.66	(1.09)	(1.09)	(1.055)	(1.00 ± 0,06)
22.12.1965		1.075	1.12	1.055	1.04 ± 0,02

Tabelle 3.1. Selbstabsorptionskorrekturfaktoren für die Messung der Quellstärken.

3.2.3. Die Auswertung der Messungen.

Durch die Verwendung eines radioaktiven Tracers wird die Mengenbestimmung auf die Messung der Quellstärke zurückgeführt. Die Quellstärken werden aus den gemessenen Zählraten errechnet. Dabei sind zu berücksichtigen:

1. Die Nullrate. Sie wird bei jeder Messung neu bestimmt.
2. Die Empfindlichkeit des Zählers. Sie fällt aus der Rechnung heraus, weil jeweils ein Kaliberpräparat mitgemessen, und nur das Verhältnis der Zählraten benötigt wird.
3. Die Selbstabsorption der Quelle. Sie hängt von der Einstellung des Zählers und von der Geometrie der Quelle ab. Für die verschiedenen gewählten Einstellungen des Messplatzes wurde die Selbstabsorption für ein Präparat im Auffänger und in dem Ionisator gemessen.
   Das Ergebnis sind Korrekturfaktoren, die so definiert sind, daß die wirkliche Quellstärke durch Multiplikation der aus der Messung berechneten Quellstärke mit dem Korrekturfaktor erhalten wird. Für die Auswertung der Ausbeutemessungen werden die in der Pille enthaltene Caesium-Charge m_p und das Verhältnis von aufgefangener zu verbrauchter Caesiummenge benötigt.

Wir definieren folgende Selbstabsorptions-Korrekturfaktoren:

1. den Korrekturfaktor kp für die Pille P

$$kp = \frac{Q\ (P)}{Q\ (P)\text{Abs.}}$$

2. den Korrekturfaktor k_H für den Auffänger H

$$k_H = \frac{Q(H)}{Q(H)\text{Abs.}}$$

wobei wir mit Q(P) bzw. Q(H) die wirklichen Quellstärken des Tracers in der Pille P bzw. im Auffänger H bezeichnen und mit Q(P)Abs. bzw. Q(H)Abs. die durch die Selbstabsorption reduzierten, nach außen wirkenden Quellstärken der Pille P bzw. des Auffängers H.

Da die Korrekturfaktoren von der Einstellung der Zählschaltung abhängen, wurden sie für alle 3 verwendeten Einstellungen des Meßplatzes bestimmt. In Tabelle 3.1. sind die Ergebnisse aufgeführt. Die 3. Messung wurde wiederholt, weil während der Messung eine Störung durch eine Fremdaktivität eintrat. Der aufgeführte Faktor kp

(1) Pille No.	(2) N(P)	(3) N(A) No	(4) N(P*)	(5) N(H)	(6) N(P) -N(P*)	(7) N(H) -No	(8) -Z))	(9) mMo mg	(10) Co 10^6	(11) Kp	(12) KH KP	(13) η_Q
1P7	-	123000 47	118	2100	-	-	-	38	-	1.13	1.12	-
1P8	18056	121000 50	106	1432	17950	1382	7,7%	242	1110	1.11	1.14	8,8%
1P9	13585	111000 49	122	1434	13460	1385	[illegible]	253	970	1.1[illegible]	1.14	11,8%
1P10	11700	117000 45	124	1769	11576	1724	15%	418	500	1.19	1.07	16%
1P11	8690	122000 44	97	2094	8600	2050	24%	450	340	1.20	1.06	25,5%
1P12	4069	116000 46	71	1428	4000	1382	34,6%	495	153	1,22	1.04	36%
1P17	1766	114000 43	59	1038	1707	995	58%	703	50	1.31	0.97	56%
1P14	4162	116740 46	90	2430	5364	2386	44,5%	600	132	1.26	(1.o)	57,5%
1P16	94	121000 41	-	54	53	1-	-	603	-	1.26	-	-
1P19	1335	119000 46	95	790	1240	744	60%	995	28	1.44	0.87	52%
1P18	4080	122000 158	492	2413	3590	2255	63%	986	84	1.44	1.07	67%
1P20	1357	128000 156	194	716	1161	540	46,5%	980	25	1.44	1.07	50%

Tabelle 3.2. Ausbeutungen an frischen Molybdänpillen.

(1) Pille Nr.	(2) N(P)	(3) N(A) No	(4) N(P*)	(5) N(H)	(6) N(P) -N(P*)	(7) N(H) -No	(8) (7)/(6)	(9) mMo/mg	(10) Co 10^6	(11) kp/kA	(12) kH/kp	(13) η_Q
2P15	20 20	120800 51	209	442 856	1810	1187	59%	600	62	1.13	1,22	68%
2P18	Hüh.	-	-	-	-	-	-	-				
2P19	2098	144400 82	179	1365	1920	1283	67%	995	36	1.30	1,17	78%
1P33	Hüh.	-	-	-	-	-	-	-				
2P26	4081	140000 83	295	2257	3786	2174	57%	1000	63	1.10	1,11	63%
3P15	3602	142000 72	447	2402	3055	2330	76,5%	600	96	1.05	1,14	87%
3P18	8124	142000 87	545	-	7580	5146	67%	986	127	1.10	1,11	74%
3P17	15282	141000 80	783	4474	14500	4400	26,6%	703	326	1.06	1,13	30%

Tabelle 3.3. Ausbeutemessungen an wiederverwendeten Molybdänpillen.

(1) Pille Nr.	(2) N(P)	(3) No	(4) N(P*)	(5) N(H)	(6) N(P) -N(P*)	(7) N(H) -No	(8) (7)/(6)	(9) mMo/mg	(10) Co 10^6	(11) k_p/k_A	(12) k_H/k_P	(13) η_Q
1P22	1233	60	75	414	1167	348	30%	995	23.5	1.33	1.17	35%
1P23	3232	49	76	376	3156	327	10,5%	1005	68	1.33	1.17	12,3%
1P24	3201	44	62	1337	3140	1293	41%	995	69	1.33	1.17	48%
2P24	1110	52	86	743	1024	691	67,5%	1002	72	1.33	1.17	79%
1P25	3678	50	69	750	3609	700	19,5%	1005	23	1.33	1.17	27%

Tabelle 3.4. Ausbeutemessungen an Wolframpillen.

bezieht sich auf 1 g Molydänpillen. k_A ist der Korrekturfaktor der Kaliberpille. Mit Hilfe des Quotienten $^{kp}/_{kA}$ läßt sich die Charge m (P) aus den Zählraten der Pille N(P), der Nullrate No, der Zählrate der Kaliberpille N(A) und der Caesiumcharge der Kaliberpille m(A) berechnen als

$$m(P) = \frac{N(P) - No}{N(A) - No} \cdot \frac{kp}{k_A} \cdot m(A)$$

Wir nennen die Restcharge nach der Trennung (P*), ihre Zählrate N(P*) und die Zählrate des aufgefangenen Caesiums N(H), dann ist die Ionenquellenausbeute η_Q

$$\eta_Q = \frac{N(H) - No}{\{N(P) - No\} - \{N(P^*) - No\}} \cdot \frac{k_H}{kp}$$

Der Quotient $\frac{k_H}{kp}$ ist in der letzten Spalte der Tabelle 3.1. eingetragen, wiederum ist kp dabei für 1 g-Molybdänpillen gültig.

In den Tabellen 3.2. und 3.3. sind die Daten zu den Ausbeutemessungen an Molybdänpillen aufgeführt, in der Tabelle 3.4. die entsprechenden Werte für die Messungen an Wolframpillen. Die Wolframpillen zeigen stark schwankende Ausbeuten und zerbrechen leicht. Sie wurden daher nicht weiter untersucht.

Die Spalte 1 gibt die Pillennummer an. Die Zahl vor P zählt die Verwendung der Pille als Emitter. In Tabelle 3.2. sind nur Pillen 1 P.X. enthalten, in Tabelle 3.3. auch 2mal und 3mal verwendete Pillen. Die einzelnen Pillen sind numeriert mit der Zahl, die hinter P steht. Die Bedeutung der Spalten 2,3,4,5,6,7,8,11,12 und 13 ist bereits erklärt. In Spalte 9 wird die Molybdänmasse der Pille aufgeführt. In Spalte 10 ist das Verhältnis

$$Co = \frac{\text{Caesiummasse}}{\text{Molybdänmasse}}$$ für die

einzelnen Versuche berechnet.

3.2.4. Fehlerabschätzungen.

Die Caesiumcharge m(P) wird, wie in Kapitel 3.2.3. erklärt, nach folgender Gleichung aus den Meßwerten bestimmt

$$m(P) \doteq m(A) \quad \frac{N(P) - No}{N(A) - No} \quad \frac{kp}{k_A}$$

Wir können die Gleichung verwenden, um den Fehler bei der Chargenberechnung aus den Fehlern der einzelnen Terme abzuschätzen.

Bei der Herstellung der Kaliberpille addieren sich die Fehler aus den Wägungen und aus dem Wasserverlust der Kaliberpille nach Fig.3.4. Die Summe dieser Fehler wird auf 7% geschätzt.

Die Summe der statistischen Fehler für den Zählratenquotienten liegt für die Pillen 1PX zwischen 1.5% und 3%.

Für den Fall, daß die Pille P die gleiche Molybdänmasse wie die Kaliberquelle A hat, ist $k_P = k_A$. Dann ist der Fehler in dem Quotienten k_P/k_A Null. Sind die Molybdänmassen der Pillen P und A verschieden, dann hängt der Fehler von der Massendifferenz der beiden Pillen P und A und von der Zählereinstellung ab. Für die Einstellung 1 nach Tabelle 3.1. liegt der Fehler des Quotienten bei 0% für 250mg Pillen und bei 6% für 1g Pillen, bei der Einstellung 2 zwischen 0% und 2%. Bei der Einstellung 3 ist er noch geringer.

Damit ergibt sich ein Gesamtfehler in der Bestimmung der Chargenmasse, der zwischen 9% und 16% liegt.

Die Ionenquellenausbeute $_Q$ ergibt sich nach Kapitel 3.2.3. aus den Messungen nach der Gleichung:

$$Q = \frac{N(H) - No}{N(P) - No \; - \; N(P^*) - No} \quad \frac{k_H}{k_P}$$

Der statistische Fehler der Zählraten liegt zwischen 3% und 7%.

Der relative Fehler des Quatienten der Korrekturfaktoren ist kleiner als die Summe oder gleich der Summe der Einzelfehler, das sind maximal 4%.
Damit ergibt sich ein Gesamtfehler von $_Q$ von 7% bis 10%.

Weitere Fehler können dadurch auftreten, daß durch Betriebsfehler wie z.B. eine Dezentrierung, die Transmission der Beschleunigungsstrecke

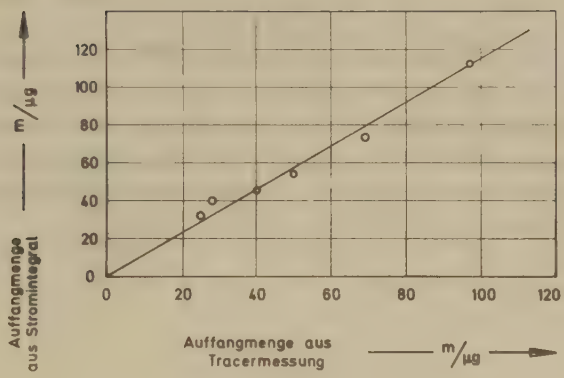

Fig. 3.6. Massenbestimmung durch Tracermessung und durch Messung des Stromintegrals.

Beim Auffangen der Caesiumionen hinter der Ionenquelle, also ohne Massenseparation, ist das Stromintegral nur dann der Masse des aufgefangenen Caesiums, die durch Tracermessung bestimmt wurde, proportional, wenn keine wesentlichen Anteile von Fremdionen auftreten. Diese Forderung wurde von den wiederverwendeten Emittern erfüllt. Aus der Steigung der Geraden läßt sich der Sekundärelektronenfaktor des Auffängerstromes zu etwa 1.17 ablesen.

reduziert wird. Einen Hinweis auf diese Effekte gibt die Streuung der Werte η_Q in Fig. 3.11., die durch die Auswertung erhalten wurden.

In Fig. 3.6. ist die aus dem Stromintegral berechnete Caesiumauffangmasse gegen die Massenwerte aufgetragen, die sich aus der Tracermenge ergeben. Durch die Messpunkte läßt sich eine Gerade durch den Ursprung legen; allerdings nur bei den Messungen mit den mehrfach verwendeten Pillen, die von Fremdalkalien gesäubert sind. Schließt man systematische Fehler aus, so kann man aus der Fig. 3.6. den Sekundärelektronenfaktor des Hohlkathodenauffängers bestimmen (siehe Unterschrift zu Fig. 3.6.).

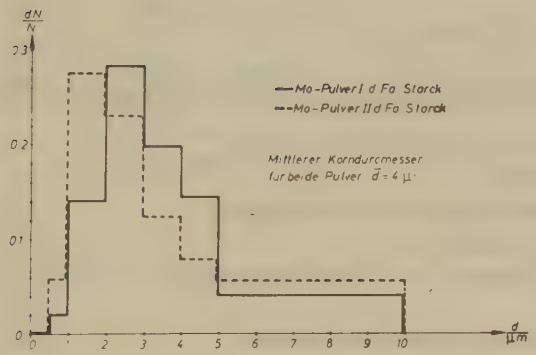

Fig. 3.7. Die Korngrößenverteilung des Molybdänpulvers.
Nach Siebanalysen der Lieferfirma.

3.3. Die Berechnung der Ausbeute.

3.3.1. Die Diffusion durch die poröse Schicht.

Der poröse Ionisator wurde durch Pressen von Molybdänpulver hergestellt. Molybdänpulver wurde gewählt, weil sich damit feste Pillen mit guten Emissionseigenschaften herstellen ließen. Das Molybdänpulver wurde von der Fa. Starck geliefert und hat nach Firmenangaben die in Fig. 3.7. dargestellte Korngrößenverteilung, die durch Siebanalyse ermittelt wurde. Der mittlere Korndurchmesser beträgt 4 Mikrometer. In Verbindung mit dieser Arbeit wurden von G. Wahl WAH 65 Gasströmungen durch poröse Molybdänschichten untersucht. Dabei wurde ein Bereich der Knudsenzahl K von 0,015 bis 33 betrachtet. Für dieses Gebiet gilt nach WAH 65 für den Gasdiffusionsstrom S

$$S = 4.8.10^{-4} \quad F_o \bar{v} \; p \frac{\bar{d}}{l} \; \varepsilon \exp \frac{}{C_1} + \frac{II}{4} \frac{1}{K} \; \varepsilon \exp \frac{}{C_2} \qquad 9$$

dabei ist p_p die Druckdifferenz zwischen beiden Seiten der Schicht,

F_o der Querschnitt der durchströmten Schicht
l die Dicke der Schicht
$\bar{v}$ die mittlere Geschwindigkeit der Gasmolekel
$\bar{d}$ der mittlere Korndurchmesser
ε die Porosität der Schicht, sie liegt zwischen 0,4 und 0,6
$K = \frac{}{d}$ die Knudsenzahl
die mittlere freie Weglänge des Gases
$C_1 : C_2$ sind Materialkonstanten der Schicht

Im Bereich 3 K 30 hat Wahl gemessen, daß der 2. Term der Glg. für S keine Rolle mehr spielt. Zur Messung wurden Argon, Helium, Stickstoff und Wasserstoff bei Zimmertemperatur verwendet. Ein Beitrag zur Strömung durch die Oberflächendiffusion im Innern der porösen Schicht konnte nicht entdeckt werden.

Die Diffusion durch die poröse Schicht findet in der Ionenquelle bei Temperaturen von 1400°K bis 1500°K statt. Der Gasdruck ist um einige Größenordnungen kleiner als bei den Wahlschen Messungen. Das Caesium zeigt daher im Gegensatz zu den von Wahl verwendeten Gasen auch einen wesentlichen Oberflächendiffusionsstrom.

T / °K	Δs / µm	r_p = 1 µm $\frac{Iv}{Is}$	r_p = 0.6 µm $\frac{Iv}{Is}$
1200	60	0,01	0,00
1400	10	0,01	0,00
1600	2	0,25	0,11

Tabelle 3.5.

Diffusionsweglänge Δs für Cs auf Wolfram bei der Temperatur T und das Verhältnis Volumenstrom I_v zum Oberflächendiffusionsstrom I_s am Porenende nach [NAZSHE61].

Eine Berechnung der Gasströmung durch eine poröse Schicht ist von Nazarian und Shelton [NAZ SHE 61] durchgeführt worden. Sie betrachten die Poren als durch die Schicht verlaufende Rohre mit dem überall gleichen Porenradius r_p. Außerdem setzen sie bei ihrer Rechnung an, daß am Ende der Pore nach dem niedrigen Gasdruck hin die Adsorptionsisotherme gilt

$$\frac{p_l}{(2\pi mkT)^{1/2}} = \frac{\sigma_l}{\tau_a}$$

Damit erhalten sie den gesamten Diffusionsstrom I

$$I = I^* \ (1 + \alpha^*)$$

wobei I* der Diffusionsstrom ohne Oberflächendiffusion ist

$$I^* = \frac{8}{3} \ \frac{\pi a^3}{(2\pi\ mkT)^{1/2}} \ \frac{(Po-Pl)}{l}$$

und der Koeffizient α^* den Einfluß der Oberflächendiffusion widerspiegelt

$$\alpha^* = \frac{3}{4} \ \frac{D_s \sigma_o (2\pi mkT)^{1/2}}{a^2 P_o}$$

In diesen Gleichungen treten folgende Größen auf:

P_l der Gasdruck am Porenende
σ_l die Flächendichte der Caesiumadteilchen am Porenende
m die Masse des Caesiumatoms
k die Boltzman Konstante
T die Temperatur der Schicht
die Verweilzeit der Caesiumadteilchen an der Oberfläche

Für das Verhältnis von Volumenstrom I_v zu Oberflächendiffusionsstrom I_s am Porenende ergibt sich

$$\left(\frac{I_v}{I_s}\right)_l = \frac{4}{3} \left(\frac{r_p}{\Delta_s}\right)^2$$

dabei ist

r_p der Porenradius
Δ_s die Diffusionslänge definiert durch die Gleichung

$$\Delta_s^2 = D_s \tau_a$$

Der Porenradius ergibt sich nach dem Zylindermodell aus der Porosität und der gesamten inneren Oberfläche der Schicht. Man kann die innere Oberfläche der Schicht auch aus dem Modell berechnen, daß sich die Schicht aus gleichen Kugeln des Durchmessers $\bar{d}$ aufbaut. Aus beiden Modellen ergibt sich der Zusammenhang zwischen dem mittleren Korndurchmesser $\bar{d}$ und dem Porenradius r_p.

$$r_p = \frac{1}{3} \bar{d} \cdot \frac{\varepsilon}{1-\varepsilon}$$

Die Diffusionslänge Δ_s, die Oberflächendiffusionskonstante D_s und die Verweilzeiten τ_a sind für das System Caesium auf Molybdän noch nicht gemessen worden. Man kennt sie teilweise für das System Caesium auf Wolfram. Diese Werte sind für die Berechnung der Tabelle 3.5. verwendet worden [NAZ SHE 61].

Aus den Werten der Tabelle 3.5. und dem von Wahl bestimmten Porenradius r_p ca. 1,3µm für unsere Molybdänschicht ergibt sich, daß fast der gesamte Caesiumdiffusionsstrom als Oberflächendiffusionsstrom aus der Pore tritt.

3.3.2. Oberflächendiffusion und Desorption der Adteilchen.

Wir haben gesehen, daß der Caesiumdiffusionsstrom durch die poröse Schicht die Pore als ein Oberflächendiffusionsstrom verläßt. Nach ZUC 61 gilt dann für die Caesiumbedeckung der Oberfläche am Rande einer Pore

$$\sigma(r) = \sigma(r_p) \frac{Ko\left\{\frac{r}{\Delta_s}\right\}}{Ko\left\{\frac{r_p}{\Delta_s}\right\}}$$

σ ist die Flächendichte der Caesiumadteilchen
$K_o(x)$ ist die modifizierte Hankelfunktion nullter Ordnung.

Verwenden wir die entwickelten Modellvorstellungen und die abgeleiteten Größen für Porenradius und Porenabstand, so erhalten wir nach obiger Gleichung ein stärkstes Absinken der Cs Flächendichte von 15% bei unserer Arbeitstemperatur nahe 1500° K. Bei tieferen Temperaturen wird die Verteilung noch gleichmäßiger. Deshalb wollen wir bei unseren weiteren Betrachtungen mit homogener Caesiumbedeckung der Emissionsfläche rechnen.

Unsere nächste Aufgabe besteht darin, die Desorption der Adteilchen zu berechnen. Messungen liegen darüber noch nicht vor. Eine Möglichkeit zur theoretischen Berechnung bietet das halbempirische Verfahren von Gyftopoulos und Levine, das sich bei einigen bekannten Systemen von Adteilchen auf metallischen Trägern bewährt hat.

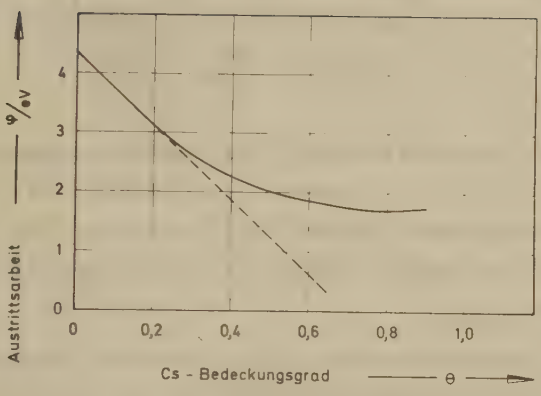

Fig. 3.8. Die Elektronenaustrittsarbeit vom caesiumbedeckten Molybdän.
Die Abhängigkeit vom Bedeckungsgrad wurde nach Levine und Gyftopoulos berechnet.

3.3.3. Die Elektronenaustrittsarbeit $\varphi_e^{Mo}(\theta)$ für caesiumbedecktes, polykristallines Molybdän.

Nach Gyftopoulos und Levine [LEV GYF 62.64] ist

$$\varphi_e^{Mo}(\theta) = \varphi_e^{Mo}(0) - \left\{\varphi_e^{Mo}(0) - \varphi_e^{Cs}(0)\right\}\left\{1 - G(\theta)\cdot\left[1 - \frac{k_1\,\theta}{1+k_2\theta}^{3/2}\right]\right\}$$

Dabei ist

$\varphi_e^{Mo}(0)$ Die Elektronenaustrittsarbeit der reinen Molybdänfläche (polykristallin)

$\varphi_e^{Mo}(\theta)$ die Elektronenaustrittsarbeit der Cs-bedeckten Mo-Fläche

$\varphi_e^{Cs}(0)$ die Elektronenaustrittsarbeit der reinen Caesiumfläche.

$G(\theta)$ ist der Formfaktor

k_1 und k_2 sind Konstanten des Systems Caesium auf Molybdän. Sie enthalten u.a. das Dipolmoment und die Polarisierbarkeit der Cs-Adteilchen ($k_1 = 2{,}37$; $k_2 = 1{,}10$).

θ ist der Bedeckungsgrad der Mo-Oberfläche mit Cs.

Als Elektronenaustrittsarbeit der reinen, polykrist. Mo-Oberfläche verwenden [LEV GYF 62] den Wert von 4,38 eV nach [AAM 62]. Dieser Wert stimmt auch gut mit dem aus einem Lit. Vergleich gewonnen von [RAS WAR 64] überein. Größere Abweichungen zeigen die Messungen von [LEV BEL 39] mit 4,2 eV. Die Autoren betonen jedoch, daß ihr Messverfahren mehr qualitative Aussagen liefert. Für die El.Austrittsarbeit des Caesiums ist der Wert von 1,81 eV nach [LEV GYF 64A] verwendet worden. Für den Formfaktor, der bei allen betrachteten Systeme verwendet wird, setzt [LEV GYF 62] die einfachste endliche Potenzreihe an, die mit den Grundgleichungen verträglich ist.

Das Ergebnis, das wir nach der angegebenen Gleichung für die Elektronenaustrittsarbeit von caesiumbedecktem Molybdän berechnet haben, ist in Fig. 3.8. dargestellt.

Aus der Fig. 3.8. ist ersichtlich, daß sich die Elektronenaustrittsarbeit für Bedeckungsgrade unter 0,3 gut durch eine Grade annähern läßt. Aus der obigen Gleichung erhält man durch den Grenzübergang 0 gegen Null die Gleichung der Näherungsgraden

$$\varphi_e^{Mo}(\theta) = \varphi_e^{Mo}(0) - \left\{ \varphi_e^{Mo}(0) - \varphi_e^{Cs}(0) \right\} k_1 \, \theta \qquad 19$$

bei

$\theta = 0{,}3$ ist der Ionisierungsgrad bereits auf weniger als 10^{-5} abgesunken, so daß wir für unsere theoretischen Betrachtungen zur Ausbeutemessung mit der linearen Näherung für die Elektronenaustrittsarbeit als Funktion des Bedeckungsgrades auskommen.

3.3.4. Die Desorption der Caesiumadteilchen von der Molybdänoberfläche nach Levine und Gyftopoulos.

Nach LEV GYF 64A;B ist die Desorptionsstromdichte j_a die Stromdichte der als neutrale Caesiumatome desorbierten Caesiumadteilchen:

$$j_a = \omega_a \sigma_f \Theta \nu \exp.\left\{\frac{\Delta S}{k}\right\} \cdot \exp\left\{\frac{-\phi_a}{kT}\right\}$$

Dabei sind

ω_a das statistische Gewicht des atomaren Cs-Zustandes
σ_f die Cs-Flächendichte für monoatomare Bedeckung der Oberfläche
Θ der Bedeckungsgrad
ν die Schwingungsfrequenz des Cs-Adteilchens
$\exp(\Delta S / k)$ ein Entropiefaktor
ϕ_a die Desorptionsenergie für Cs-Atome
T ist die Temperatur der Oberfläche

Aufgrund der Näherungen, die Levine und Gyftopoulos anhand von Modellvorstellungen gewinnen, erscheint das Ergebnis weniger gesichert als der bereits berechnete Verlauf $\varphi_e^{Mo}(\Theta)$. Für unsere weitere Betrachtung ist nur der qualitative Verlauf der Desorptionsstromdichten wichtig. Für die Gesamtdesorptionsstromdichte haben wir nach Levine und Gyftopoulos den in Fig.3.9. dargestellten Verlauf berechnet.

3.3.5. Ein einfaches Modell zur Berechnung der Ausbeuten I.

Für die Betriebszeit einer Caesiumanode ergibt sich die über diese Zeit gemittelte Ausbeute η_I

$$\eta_I = \frac{\text{Zahl der desorbierten Ionen}}{\text{Zahl der desorbierten Ionen und Atome}}$$

Wir können die Teilchenzahlen durch die entsprechenden Strominte-grale ersetzen:

$$\eta_I = \frac{\int_{\text{Trennzeit}} I_i\,dt}{\int_{\text{Trennzeit}} (I_i + I_a)\,dt}$$

Dabei ist:

I_i der desorbierte Caesiumionenstrom
I_a der desorbierte Caesiumatomstrom

Wegen der näherungsweise homogenen Caesiumbedeckung zwischen den Poren nach Kapitel 3.3.2. können wir die mittleren Stromdichten einführen für die Caesiumdesorptionsströme

j_i für die Ionenstromdichte
j_a für die Atomstromdichte

damit erhalten wir die Gleichung

$$\eta_I = \frac{\int_{Tr.} j_i F\,dt}{\int_{Tr.} (j_i + j_a) F\,dt} = \frac{\int_{Tr.} j_i\,dt}{\int_{Tr.} (j_i + j_a)\,dt} = \frac{\int_{Tr.} \beta \cdot (j_i + j_a)\,dt}{\int_{Tr.} (j_i + j_a)\,dt}$$

wenn wir den Ionisierungskoeffizient ß einführen, der über den Ionisierungsgrad und die Langmuirgleichung mit bereits früher berechneten Grundgrößen des Systems verknüpft wird.

$$\beta = \frac{j_i}{(j_i + j_a)} \quad ; \quad \alpha = \frac{j_i}{j_a}$$

$$\alpha = \frac{1}{2} \exp\left\{ \frac{\varphi e - J_{cs}}{kT} \right\}$$

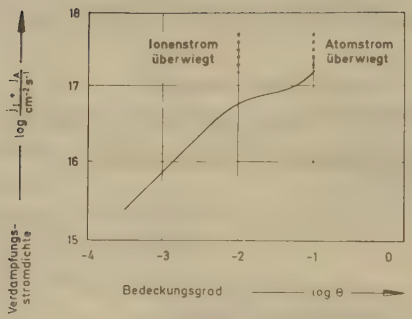

Fig.3.9. Der Desorptionsstrom als Funktion vom Bedeckungsgrad in doppelt logarithmischer Darstellung.
Die Kurve wurde nach Levine und Gyftopoulos für Caesiumadteilchen auf polykristallinen Molybdän berechnet.

Wie wir in Kap. 3.3.3. gezeigt haben, hängt die Elektronenaustrittsarbeit der Molybdänoberfläche von der Caesiumbedeckung ab und ist im Bereich 0 - 0,3 durch eine lineare Funktion des Bedeckungsgrades Θ darstellbar.

$$\varphi_e^{Mo}(\Theta) = \varphi_e^{Mo}(0) - \left\{\varphi_e^{Mo}(0) - \varphi_e^{Cs}(0)\right\} k_1\Theta = \varphi_e^{Mo}(0) - \gamma_1\Theta$$

damit wird

$$\alpha = \alpha_o e^{\frac{-\Theta}{\Theta_1}} \quad ; \quad \alpha_o = \frac{1}{2} \exp\left\{\varphi_e^{Mo}(0) - I_{Cs}\right\} \quad ; \quad \Theta_1 = \frac{kT}{\gamma_1}$$

$$\beta = \frac{\alpha_o e^{-\Theta/\Theta_1}}{1 + \alpha_o e^{-\Theta/\Theta_1}}$$

Unsere mittlere Ausbeute ist somit:

$$\eta_I = \frac{\int_{\text{Trennzeit}} \left(\frac{\alpha_o e^{-\Theta/\Theta_1}}{1 + \alpha_o e^{-\Theta/\Theta_1}}\right) \left(j_i + j_a\right) dt}{\int_{\text{Trennzeit}} \left(j_i + j_a\right) dt}$$

Unser Modell verwendet nun zwei vereinfachende Annahmen:

1. Der Gesamtstrom $(j_i + j_a)$ ist proportional dem Bedeckungsgrad des Ionisators.
2. Der Bedeckungsgrad Θ nimmt exponentiel mit der Zeit ab.

Die erste Annahme gilt streng für Bedeckungsgrade Θ unter 0,01 bis Θ = 0,1 noch näherungsweise (Fig.3.9.). Für Θ = 0,1 ist β bereits auf etwa 0,15 abgesunken, d.h. die Grenze des Gebietes mit hohen Ionisierungskoeffizienten ist bereits erreicht.

Die zweite Annahme bedarf zu ihrer Begründung der Kenntnis von der Zeitabhängigkeit von drei verschiedenen Prozessen:

1. Der Reduktion des Cs_2SO_4 zu Caesium
2. Der Diffusion des Caesiums durch die poröse Molybdänschicht
3. Der Verdampfung des Caesiums an der Oberfläche.

Die Reduktion des Caesiumsalzes sollte einen exponentiel abfallenden Zeitverlauf haben. Die Zeitkonstante läßt sich wegen des unbekannten Wertes der bei dem chemischen Prozesses in der Oberflächenphase beteiligten Reaktionsenergien nicht angeben.

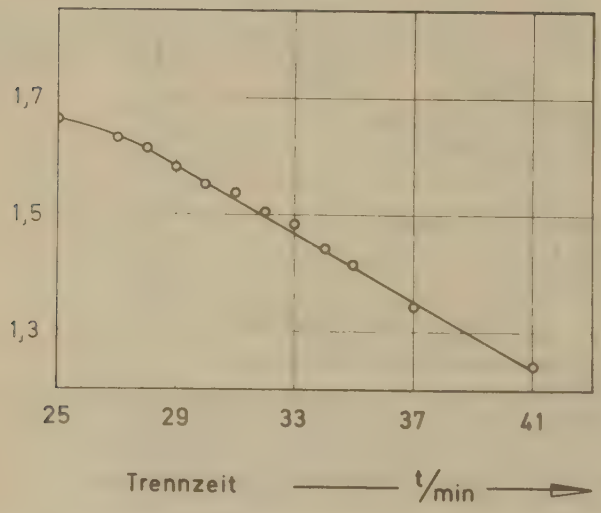

Fig.3.10. Das Absinken des Ionenstroms am Ende einer Trennung. Um den exponentiellen Abfall des Stromes deutlich zu zeigen, wurde der Logarithmus des Stromes gegen die Zeit aufgetragen.

Bei der Diffusion einer Substanz in einem homogenen Medium mit konstanten, von der Konzentration der Substanz unabhängigem Diffusionskoeffizienten ergibt sich für die Konzentration C der Substanz im Medium, wenn am Anfang die Substanz auf der Fläche x = 0 konzentriert ist:

$$C = \frac{No}{(4\pi Dt)^{1/2}} \cdot e^{-\frac{x^2}{4Dt}}$$

setzen wir für x = 2d ;
wobei d die Schichtdicke des Emitters ist,
so erhalten wir:

$$C(2d) = \frac{No}{(4\pi Dt)^{1/2}} \exp\left\{-\frac{\tau}{t}\right\}$$

dabei ist die Zeitkonstante:

$$\tau = \frac{4d^2}{4D}$$

Setzen wir in Ermangelung des Oberflächendiffusionsdoeffizienten D von Cs auf Molybdän, den für Cs auf Wolfram [NAZ SHE 61] ein, so erhalten wir für

$T = 1200^{\circ}K$; $\tau = 230$ s
und für $T = 1400^{\circ}K$; $\tau = 180$ s

Aus der Brenndauer der Molybdänpille bis zu einem Absinken des Caesiumgehaltes auf etwa einen Prozent erhalten wir eine Zeitkonstante von der Größenordnung 10 Min. bis 15 Min.

Die Verweilzeiten des Caesiums an der Oberfläche sind klein gegenüber diesen Zeiten.
Die Annahme 2 über den exponentiellen Abfall der Bedeckung mit der Zeit ist von einer gewissen Willkür und hat die Aufgabe, eine analytische Lösung zu liefern. Beim Abbrennen der Pille wird am Ende der Betriebszeit annähernd exponentieller Abfall des Auffängerstromes beobachtet (Fig.3.10.). Da zu diesem Zeitpunkt die Oberflächenbedeckung des Ionisators verschwindet, sollte nach Fig.3.9. der Ionenstrom ein Maß für den Gesamtstrom sein.

Setzen wir unsere Annahmen in unsere Gleichung für n_I ein, so erhalten wir eine integrable Form für die Ionisierungsausbeute

$$n_I^t = \frac{\int_{\theta o}^{o} \frac{\alpha_{oe}^{-\frac{\theta}{\theta_1}}}{1+\alpha_{oe}^{-\theta/\theta_1}} \, d\theta}{\int_{\theta o}^{o} d\theta}$$

mit der Lösung

$$n_I^t = \frac{\theta_1}{\theta_o} \ln \left\{ \frac{1 + \alpha_o}{1 + \alpha_o \exp\left(-\frac{\theta_o}{\theta_1}\right)} \right\}$$

darin ist

θ_o der Bedeckungsgrad zu Beginn der Trennung

θ_1 ist eine Integrationskonstante.

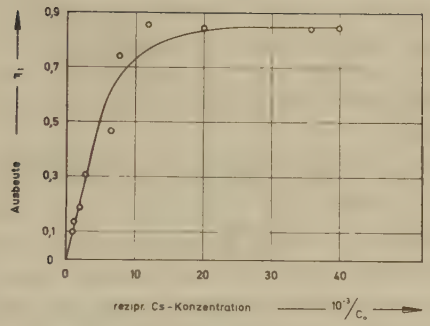

Fig. 3.11. Vergleich zwischen den Ionisierungsausbeuten, die aus den Messungen und aus dem theoretischen Model bestimmt wurden. Die Meßwerte sind als Kreise, die theoretischen Werte durch die ausgezogene Kurve dargestellt. In dieser Kurve wurden nur Messungen an neuen Molybdänemittern berücksichtigt.

3.4. Der Vergleich zwischen gemessenen und berechneten Ausbeuten.

3.4.1. Die Berechnung der Ionisierungsausbeute aus den gemessenen Ionenquellenausbeuten.

Die am Ionisator erzielte Ionenausbeute η_I ist nach dem beschriebenen Modell berechnet worden. Gemessen wurde jedoch die Ausbeute η_Q über die gesamte Ionenquelle. η_Q ist immer kleiner als η_I, weil ein Teil der Ionen auf die Beschleunigungselektrode fällt. Aus der Betriebskurve der Ionenquelle Fig. 3.3. erkennt man zwei verschiedene Anteile des Stromes I_z zur Beschleunigungselektrode.

1. Ein zeitlich kurzer, aber hoher Stromstoß beim Hochheizen der Pille;
2. ein kleiner aber die gesamte Trennzeit andauernder Teilstrom.

Der zweite Anteil hängt von der Zentrierung der Elektroden und von der Perveanz des Ionenbündels ab. Die Transmissionsverluste werden durch eine Korrektur der gemessenen Ionenquellenausbeuten mit dem Korrekturfaktor 1,10 in die stationäre Ionisierungsausbeute η_S^M umgerechnet, die der Ionisierungsausbeute bei Dauerbetrieb entspricht.

Beim Hochheizen trifft der Ionenstrom für einige Minuten auf die Beschleunigungselektrode statt in den Auffänger (Fig. 3.3.). Wir korrigieren diesen Verlust durch Multiplikation der stationären Ionisierungsausbeute mit dem Faktor K_3.

$$K_3 = \frac{\text{Cs-Anfangsmenge + Verlustmenge } \Delta m}{\text{Cs-Anfangsmenge}}$$

Dabei wird für alle Pillen 1PX dieselbe Verlustmenge $\Delta M_s = 10\mu g$ eingesetzt, unabhängig von dem Caesiumgehalt der Pille. Der Wert ΔM_s wurde durch Anpassung gewonnen.
Diese Korrektur ist für größere Caesiumanfangskonzentrationen bei denen der Ionisierungskoeffizient ß zu Beginn der Trennung klein gegen 1 ist sicher zu groß, weil während der Anheizzeit wenig Ionen verdampfen. Vielleicht stellt die Abweichung der Messpunkte in Fig.3. am Knickpunkt der theoretischen Ausbeutefunktion nur eine Überkorrektur der Anheizverluste dar. Bei noch höheren Anfanfskonzentrationen ist die Cs-Anfangsmenge so groß, daß die Korrekturmenge Δm_s keine merkliche Rolle mehr spielt. In Fig.3.11. sind die aus der Messung berechneten Ionisierungsausbeuten η_I^M

$$\eta_I^M = K_3 \cdot \eta_S^M = K_3 \cdot 1.10 \cdot \eta_Q$$

als Kreise eingetragen.

3.4.2. Die Bestimmung der Parameter Θ_1 und α_o der theoretischen Ausbeutefunktion durch Anpassung an die gemessenen Ausbeuten.

In der theoretischen Ausbeutefunktion sind zwei Parameter enthalten, die eine physikalische Bedeutung haben und durch Anpassung an die Messwerte bestimmt werden sollen.

Beim Auftragen der theoretischen Ausbeutefunktion in Fig. 3.11. gegen den reziproken Wert der Anfangskonzentration des Caesiums hat die Kurve zu Beginn einen linearen Anstieg mit der Steigung m_t

$$m_t = \gamma \ln (1+\alpha_o)$$

Wir entnehmen die Steigung aus der Messwertskurve und erhalten so die erste Bestimmungsgleichung für die beiden Parameter.

Die theoretische Ausbeutefunktion hat in der beschriebenen Auftragung einen asymptotischen Endwert:

$$\eta_I^t \ (Co \to 0) = \beta_o = \frac{\alpha_o}{1+\alpha_o}$$

Er entspricht dem Ionisierungskoeffizienten der Cs-freien Ionisatorfläche. Aus der Messwertskurve erhalten wir den Parameterwert

$$\alpha_o^M = 9$$

Berechnen wir nun mit Hilfe der Langmuirgleichung aus dem Ionisierungskoeffizienten α_o^M die Elektronenaustrittsarbeit φ_e^{Mo} der Cs-freien Ionisatorfläche, so erhalten wir den Wert

$$\varphi_o^{Mo} = 4{,}27 \text{ eV} \quad ; \quad \begin{matrix} T = 1500^oK \\ J(Cs) = 3{,}9eV \end{matrix}$$

Dieser Wert liegt etwas unterhalb des Literaturwertes für Molybdän von 4,38 eV. Die Abweichung kann durch Anwesenheit von anderen Alkaliionen als Adteilchen an der Molybdänoberfläche des Ionisators verursacht sein.
Der Parameter α_o^M wird stark durch die Transmissionskorrektur beeinflußt. Verwenden wir die Korrektur 1,20 anstelle von 1,10 so steigt α_o^M auf ca. 20 und die daraus berechnete Elektronenaustrittsarbeit auf den Literaturwert für reines Molybdän von 4,38 eV. Der zweite Parameter erlaubt die Berechnung der Konstanten Θ_1, die in der theoretischen Ableitung auftritt.

$$\Theta_1 = \frac{\gamma \cdot m(Mo) \cdot N_L}{F_i \cdot M_{Cs} \cdot \sigma_f(Cs\text{-}Mo)}$$

m(Mo) ist die Molybdänmenge der Pille
N_L ist die Loschmidzahl
F_i ist die innere Oberfläche der Pille
M_{Cs} ist das Molekulargewicht des Caesiums
σ_f(Cs-Mo) ist die Flächendichte der α-Adteilchen für monoatomare Bedeckung des Mo.

Durch Mittelung über die in Fig.3.7. gezeigte Korngrößenverteilung und der Annahme von kugelförmigen Körnern ist die innere Oberfläche einer 1g Mo-Pille zu 2000 cm^2 bestimmt worden.

Für θ_1 ergibt sich der Wert

$$\theta_1 = 0{,}21 \text{ ; für } \varphi_o = 4{,}26\text{eV}$$

bzw. $\theta_1 = 0{,}12$; für $\varphi_o = 4{,}38$eV

aus der theoretischen Ableitung ergibt sich für

$$\theta_1^t = \frac{kT}{\left(\frac{\partial \varphi}{\partial \theta}\right)_{\theta=0}} = 0{,}02$$

Diese Diskrepanz läßt sich nicht im Rahmen des Modells erklären, sie zeigt die Grenzen der verwendeten Näherungen an.

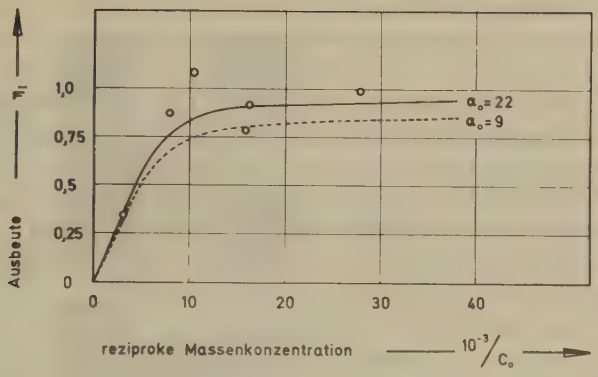

Fig. 3.12. Die Ionisierungsausbeute von wiederverwendeten Molybdänemittern.
Die eingezeichneten Punkte sind aus den gemessenen Ausbeuten ermittelt. Es wurden nur Messungen an den zweimal oder dreimal verwendeten Molybdänemittern berücksichtigt. Die theoretische Kurve nach Fig. 3.11. ist eingezeichnet und zum Vergleich eine zweite theoretische Kurve für eine Elektronenaustrittsarbeit der freien Molybdänoberfläche von 4,38 eV.

3.4.3. Die Ionisierungsausbeute von Pillen, die zum 2. oder 3.mal verwendet wurden.

Aus der gemessenen Ionenquellenausbeute der Pillen 2PX und 3PX wurde durch Multiplikation mit dem Faktor 1,10 die stationäre Ionisierungsausbeute η_s^M berechnet. Bei der Berechnung der Ionisierungsausbeute wurde als Cs-Verlustmenge Δm_s = 8 µg eingesetzt. Die erhaltenen Werte sind als Kreise in Fig. 3.12. eingezeichnet. Außerdem ist die theoretische Ausbeutefunktion η_I^t aufgetragen, die für die frischen Pillen gefunden wurde. Auffällig ist, daß alle Meßpunkte höher liegen als im Fall der frischen Pillen. Ursache davon ist wahrscheinlich die Säuberung der Pille durch die vorangegangenen Trennungen von den Verunreinigungen des Molybdänpulvers. Obwohl die Zahl der Meßpunkte etwas knapp ist, sieht man, daß die eingezeichnete Ausbeutefunktion mit α_o = 23, d.e. einer Elektronenaustrittsarbeit von 4,38 eV besser zu den Meßpunkten paßt als die für die Pillen 1PX gültige mit α_o = 9. Eine Erhöhung der Elektronenaustrittsarbeit über den Wert der reinen Molybdänoberfläche durch Sauerstoffadionen ist möglich, kann jedoch anhand der vorliegenden Messungen nicht sicher nachgewiesen werden.

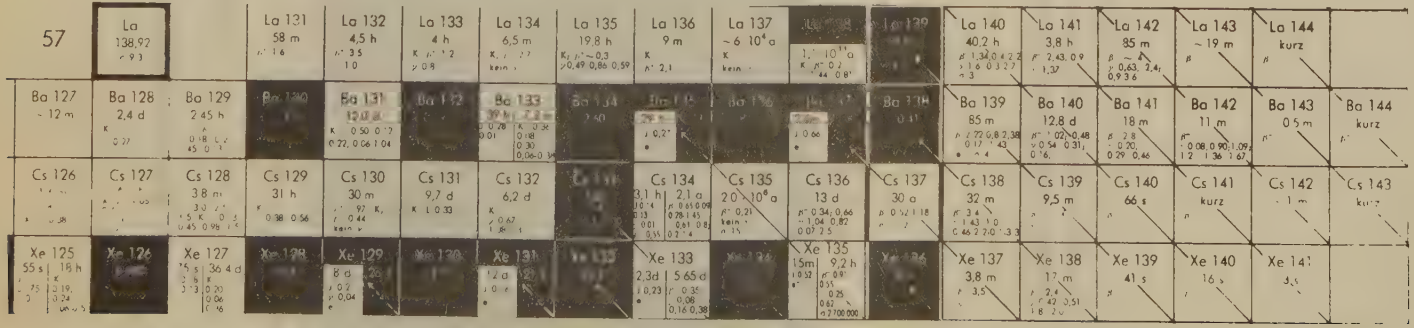

Fig. 4.1. Ausschnitt aus der Nuklidkarte nach SEE 61

4. Die Trennung der radioaktiven Caesiumisotope

4.1. Übersicht über die Caesiumisotope

Da das Caesium als Reinelement nur ein stabiles Isotop besitzt, ist man für die ISV-Messungen auf die Radio-Isotope des Caesiums angewiesen. Fig. 4.1. zeigt zur Übersicht einen Ausschnitt aus der Nuklidkarte [SEE 61] . Nach den Halbwertszeiten sind folgende Isotope für eine Untersuchung geeignet: 129, 131, 132, 133, 134, 135, 136 und 137. Die Isotope 129 und 132 fallen aus, weil sie sich nicht in genügender Menge herstellen lassen. Cs 136 ließe sich herstellen durch Aktivierung von Spaltcaesium. Die Arbeiten an einer Strahlungsquelle von einigen Curie bei einer Gammaenergie von 0,8 MeV erfordert aber Mittel, die z.Zt. nicht in unserem Institut zur Verfügung stehen. Über die Aufarbeitung der übrigen Cs-Isotope mit dem Marburger radioaktiven Separator wird im folgenden berichtet.

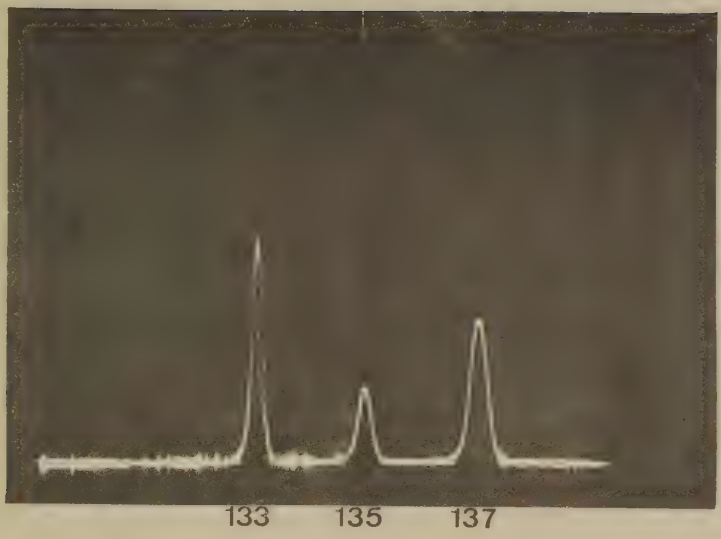

Fig. 4.2. Das Massenspektrum des Spaltcaesium aus Orsay.

Im Separator gemessen bei einer Beschleunigungs-spannung von 20 kV und einem Strahlstrom von 1 uA.

Versuch Nr.	Ausgangsmat. Spaltcs.aus	Cs-Trennmenge m/µg	Mischungsverh. 133:135:137	η_T
9	Harwell	44	44 : 24 : 32	
10	Orsay	75	46 : 17,5 : 36,5	
11	Orsay	39	47,5 : 16,2 : 36,3	
	Mischungen			
12	Orsay	9,5	57 : 46 : 2	17%
13	Orsay	4,5	49,5 : 0 : 50,5	14%
14	Orsay	11,5	0 : 46,5 : 53,5	14%

Tabelle 4.1.: Hohlkathodenfüllungen mit ungetrenntem Spaltcaesium (Versuch 9,10,11) und mit getrennten Isotopen (12,13,14).

4.2. Die Abtrennung der Caesiumisotope 135 und 137.

Ausgangsmaterial der Isotopentrennung war Spaltcaesium aus Harwell und Orsay. Fig. 4.2. zeigt das Massenspektrum, aufgenommen mit dem Isotopenseparator. Das Mischungsverhältnis der drei Cs-Isotope betrug:

Cs 133:Cs 135:Cs137 = 50 : 17 : 33.

In den Versuchen 9, 10 und 11 wurden die Hohlkathoden direkt hinter der Ionenquelle gefüllt, d.h. die Ionen wurden ungetrennt mit der vollen kinetischen Energie von 20 keV bis 30 keV in die Hohlkathode eingeschossen. Der Gesamtwirkungsgrad betrug dabei etwa 60%. Die Tabelle 4.1. gibt die Daten der Hohlkathodenpräparationen an [HUE WAG 67]. In einer zweiten Versuchsreihe wurden mit Hilfe der elektromagnetischen Isotopentrennung jeweils gleichteilige Gemische zweier Isotope in einer Hohlkathode aufgefangen. Die Ionen wurden dabei vor dem Einschuß von einer Primärenergie von 25 KeV auf etwa 800 eV abgebremst. Die Tabelle 4.1. gibt die Daten der einzelnen Trennungen an. Der Gesamtwirkungsgrad lag über 20%.

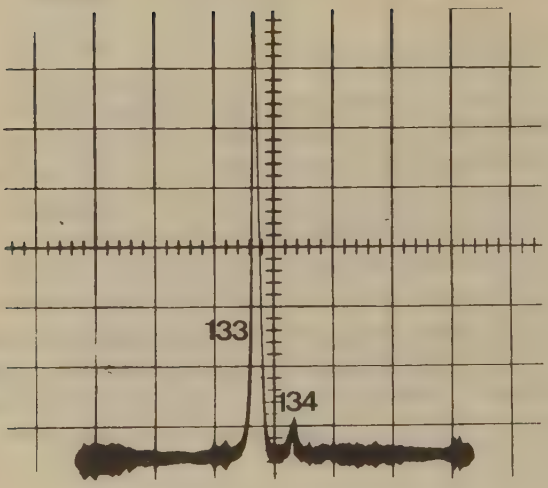

Fig. 4.3. Das Massenspektrum des neutronenaktivierten Caesium aus Oak Ridge. Bei einer Beschleunigungsspannung von 20 kV und einem Strahlstrom von 1 μA im Separator gemessen.

4.3. Die Abtrennung des Caesiumisotops 134.

Als Ausgangsmaterial diente hierbei neutronenaktiviertes Cs 133 aus Oak Ridge. Es enthielt ca. 5% Caesium 134. Fig.4.3. zeigt das mit dem Massentrenner aufgenommene Massenspektrum. Die Ionen wurden separiert und vor dem Einschuß retardiert. Außerdem wurde durch wechselweises Auffangen der beiden Isotope ein etwa gleichteiliges Gemisch hergestellt, wie es für das verwendete optische Messverfahren nötig ist. Bei der Mischung wurde ein Stromintegrator zur Kontrolle verwendet. In 4 Trenngängen wurde in 12 Stunden reiner Trennzeit etwa 5 ug Caesium aufgefangen, das aus einem Gemisch von 47% Cs 134 und 53% Cs 133 bestand. Die mittlere Ausbeute lag über 20% [HUE WAG 66].

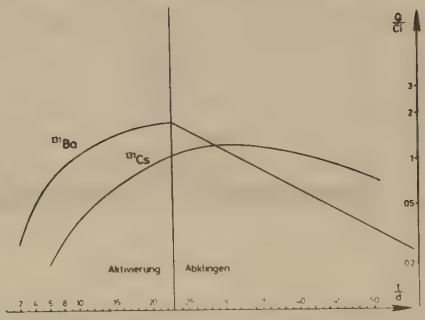

Fig. 4.4. Aufbau und Zerfall von den Radionukliden ^{131}Ba und ^{131}Cs aus ^{130}Ba. Die radioaktiven Quellstärken sind im logarithmischen Maßstab aufgetragen. Die Aktivierung ist für die Werte des Karlsruher Reaktors berechnet nach [SEE 67].

4.4. Die Abtrennung des Caesiumisotops 131.

Die Herstellung des Isotops Cs 131 geht vom Barium 130 aus. Durch Neutronenaktivierung entsteht Barium 131, das mit einer Halbwertszeit von 12 Tagen zu Caesium 131 zerfällt. Cs 131 zerfällt schließlich mit einer Halbwertszeit von 9,7 Tagen zu stabilem Xenon, wie man aus Fig.4.1. entnehmen kann. Fig. 4.4. zeigt, wie sich bei der Aktivierung im Reaktor zuerst das Barium 131 aus dem Barium 130 bildet und dann die Tochtersubstanz Caesium 131. Nach einem Reaktorzyklus von etwa 3 Wochen endet die Bestrahlung. Danach sinkt die Barium 131 Menge entsprechend der Halbwertszeit von 12 Tagen ab. Die Caesium 131 Menge hingegen steigt noch etwas an, so daß der optimale Zeitpunkt für die radiochemische Abtrennung des entstandenen Caesiums von dem Barium der Charge bei etwa 8 Tagen liegt. Diese radiochemische Abtrennung, die im Kernchemischen Institut von Herrn Prof.Seelmann-Eggebert in Karlsruhe von den Herren Dr. Grupe und Dr. Wassilopulos durchgeführt wurde, ist dadurch besonders schwierig, daß im abgetrennten Cs 131 keine wesentlich größeren Mengen von Cs 133 oder anderen Alkalien enthalten sein dürfen, weil sonst die Ionenquellenausbeute abgesenkt wird. Auf einen Vorschlag von Herrn Prof. Seelmann-Eggebert wurde als Ausgangsmaterial natürliches Barium verwendet. Dieses enthält etwa 0,1% Barium 130. Da die Aktivierungsausbeute nach Fig.4.4. ebenfalls etwa $1 \cdot 10^{-3}$ ist, beträgt die Caesiumkonzentration im Barium nach der Aktivierung maximal $1\ 10^{-6}$. Um die gewünschten Cs-Mengen von 10µg zu erhalten, sind also Ausgangsmengen an Barium von 10g und mehr nötig. Die Schwierigkeiten, die sich hieraus ergeben sind in [GRU MAS] beschrieben. Die erste Probe, die uns von Karlsruhe geliefert wurde, zeigte einen zu hohen Gehalt an Natrium und Kalium, wie wir durch optische und massenspektrometrische Messungen feststellen konnten. Die zweite Probe wurde im Trenner verarbeitet. Durch Defekte konnten nur Ausbeuten von einigen Prozent erreicht werden. Die aufgefangenen Cs 131-Mengen waren daher für optische Präzisionsmessungen zu gering. Die 3. Probe wurde schließlich für die vorliegenden Versuche verwendet und ergab gute Resultate sowohl bei der Herstellung als auch bei der optischen Messung.

Während das Mischungsverhältnis in Probe 1 auf

Cs 131 : Cs 133 = 1 : 100 geschätzt wurde,

lag es nach massenspektrometrischer Messung bei Probe 2 bei

Cs 131 : Cs 133 = 60 : 40

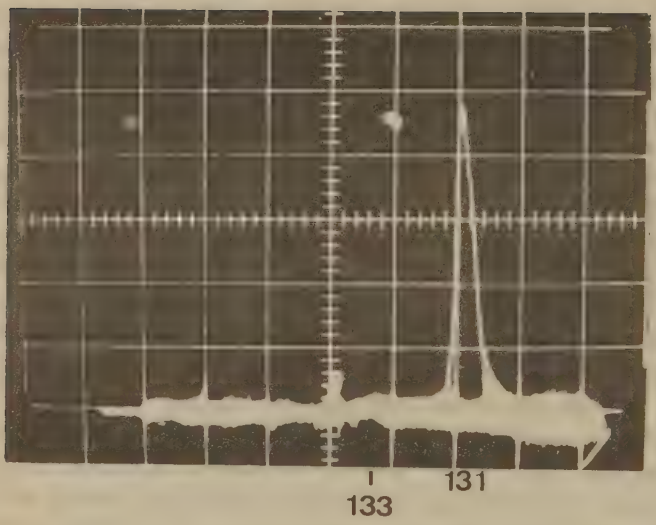

Fig.4.5. Das Massenspektrum der von Karlsruhe gelieferten Cs 131-Probe Nr.3, gemessen im Separator mit einer Beschleunigungsspannung von 20kV bei einem Strahlstrom von etwa 0,5 µA.

und bei Probe 3 nach massenspektrometrischer Messung siehe Fig.4.5. etwa bei

Cs 131 : Cs 133 = 96 : 4

Der Natrium- und Kaliumgehalt lag bei Probe 3 nach kernchemischen Messungen (Aktivierungsanalyse) unter dem Caesiumgehalt und trat bei der Ionenerzeugung nicht störend in Erscheinung.

Von den 10 µg 131 Cs der 3. Probe wurde etwa ein Drittel auf einen Emitter geträufelt, der durch eine Vorbehandlung von Alkalien befreit worden war. Mit dieser Charge wurde das Mischungsverhältnis der Caesiumisotope in der Probe bestimmt. Zum Rest wurde Cs 133 zugemischt um ein gleichteiliges Gemisch beider Isotope zu erzeugen. Dann wurde die Charge direkt ohne Massentrennung in eine Hohlkathode eingeschossen. Die dabei aufgefangene Caesiummasse betrug 2,8 µg. Das Mischungsverhältnis der beiden Cs-Isotope betrug

Cs 131 : Cs 133 = 1 : 3

Offensichtlich hatten wir die Verluste bei der Aufzeichnung des Massenspektrums unterschätzt. Der Rest von Probe 3 und eine etwa gleiche Cs 133-Menge wurden auf die leergebrannte Pille gebracht und eine zweite Hohlkathode in der beschriebenen Weise gefüllt. Dabei wurden 7,3 µg Caesium aufgefangen. Das Mischungsverhältnis betrug

Cs 131 : Cs 133 = 41 : 59

Der Gesamtwirkungsgrad der Präparation lag bei 50%.

Caesiumisotope	$\Delta\nu_{IS}$/mK ; λ = 8943 Å	$\Delta\nu_{IS}$/mK ; λ = 8521 Å	
133 - 131	- 0,39 ± 0,09	- 0,28 ± 0,20	
134 - 133	+ 1,17 ± 0,05	+ 1,23 ± 0,08	
135 - 133	- 1,23 ± 0,04	- 1,21 ± 0,15	
137 - 133	- 4,81 ± 0,03	- 4,75 ± 0,08	
137 - 135	- 3,57 ± 0,05	- 3,66 ± 0,08	

Tabelle 5.1. Übersicht über die gemessenen Isotopieverschiebungen nach [HUE WAG 66]; [HUE WAG 67]; [HUE WAG 68].

5. Übersicht über die optischen Untersuchungen an den im Massentrenner präparierten Caesiumproben.

Die optischen Untersuchungen wurden von H. Hühnermann durchgeführt. Meßverfahren und Meßanordnung sind in [HUE 66] beschrieben. Gemessen wurde die Isotopieverschiebung an 2 Übergängen:

1. am Übergang $6p\ ^2P_{1/2} - 6s\ ^2S_{1/2}$
   mit der Wellenlänge von 8943 Å
2. am Übergang $6p\ ^2P_{3/2} - 6s\ ^2S_{1/2}$
   mit der Wellenlänge von 8521 Å.

Außerdem wurden 2 Kernquadrupolkopplungskonstanten bestimmt, nämlich

$$B\ (6p\ ^2P_{3/2};\ ^{134}Cs) = (1{,}49 \pm 0{,}15)\ mK$$

und $$B\ (6p\ ^2P_{3/2};\ ^{131}Cs) = (-2{,}73 \pm 0{,}35)\ mK$$

Die gemessenen Isotopieverschiebungen sind in der Tabelle 5.1. zusammengefaßt.

6. Zusammenfassung

Das Ziel dieser Arbeit ist die Trennung der radioaktiven Caesiumisotope und die Präparation von Hohlkathoden für die Messung der Isotopieverschiebung an den optischen Spektrallinien
= 8943 Å und = 8521 Å.

Die hohen spezifischen Quellstärken der Caesiumisotope und die geringen Mengen, die bei einigen von ihnen zur Verfügung stehen, erfordern eine hohe Ausbeute bei der Trennung. Durch Tracermessungen an thermischen Oberflächenionenquellen mit porösen Molybdänemittern wird die Ionisierung an einer caesiumbedeckten Molybdänoberfläche in Abhängigkeit vom Zustand der Oberfläche und von der Cs-Bedeckung der inneren Oberfläche des porösen Emitters gemessen. Auf Grund dieser Untersuchungen kann die Ionenerzeugung auf einen Wirkungsgrad von über 80% gebracht werden. Für die Trennung von Cs-Chargen der Größenordnung 100 ug ergeben sich dabei Emitterflächen von 0,5 cm^2. Diese für Isotopenseparatoren sehr großen Emissionsflächen erfordern die Entwicklung eines besonderen Beschleunigungssystems, um bei hoher Transmission ein Ionenbündel mit homogener Stromdichte über den Bündelquerschnitt zu erzeugen. Als maximaler Wirkungsgrad der Ionenquelle werden 80% erreicht.

Um die getrennten Ionen direkt in die Bohrung der Hohlkathode (3 mm Ø) einschiessen zu können, wird die bisherige astigmatische Optik des Trenners auf eine stigmatische Abbildung umgestellt. Dazu wird eine ebene Retardierungslinse hinter dem Magnetfeld verwendet, in der außer der z-Abbildung noch eine Retardierung der Ionen auf einige Prozent der Primärenergie erfolgt. Diese Linse zeigt einen großen Öffnungsfehler und erlaubt nur die Verwendung schmaler Ionenbündel. Durch eine weitere ebene Linse, eine Einzellinse vor dem Magneten, wird eine Zwischenabbildung durchgeführt, die zu einer Reduktion der Bündelbreite beim Eintritt in die Retardierungslinse führt. Nach diesen Vorversuchen und einer Reihe von technischen Entwicklungen, die durch die Verwendung des radioaktiven Materials notwendig werden, werden mit den Caesiumisotopen 131 (Halbwertszeit 9,7 d); 133 (stabil); 134 (HWZ 2,1a); 135 (HWZ 2 10^6a); 137 (HWZ 30 a); Hohlkathoden zur Messung der Isotopieverschiebung der Cs-Isotope präpariert. Der Gesamtwirkungsgrad der Präparation liegt dabei beim direkten Einschuß hinter der Ionenquelle bei 50% bis 60%, beim Einschuß nach Trennung und Retardierung bei 20%.

7. Anhang

7.1. Figurenverzeichnis.

Fig.	Titel	Seite
2.1.	Blockschaltbild vom Trenner.	8a
2.2.	Blockschaltbild Magnetfeldregelung	10a
2.3.	Amplitudengang Magnetfeldregelung	11a
2.4.	Blockschaltbild schnelle Stabilisierung	13a
2.5.	Blockschaltbild Hochspannungsgerät	13b
2.6.	Teilschaltbild Hochspannungsgerät	13c
2.7.	Hochspannungsbrumm bei kontanter Belastung mit und ohne Trenntrafo	13d
2.8.	Hochspannungsbrumm als Funktion der Belastung	13e
2.9.	Relat.Hochspannungsbrumm ohne und mit schneller Stabilisierung	14a
2.10.	Astigmatische Abbildung mit Separatorgeometrie	15a
2.11.	Stigmatische Abbildung mit Spektrometergeometrie	15b
2.12.	Strom- und Stromdichteausbeute	17a
2.13.	Elektrolytischer Trog.Schema	18a
2.14.	Elektrolyt.Trog.Photo.	18b
2.15.	Ionenkanone	19a
2.16.	Öffnungsfehler der Linse 3	20a
2.17.	Optimale Retardierungsspannung	20b
2.18.	Der Auffängerstrom als Funktion vom Strahlstrom	20c
2.19.	Der maximale Auffängerstrom als Funktion der Beschleunigungsspannung	20d
2.20.	Der radioaktive Labortrakt	24a
3.1.	Querschnitt durch die neue Caesium-Ionenquelle	27a
3.2.	Die Pillentemperatur als Funktion der Heizleistung	28a
3.3.	Betriebskurven	28b
3.4.	Gewichtsverlust einer feuchten Pille	30a
3.5.	Zerfallsschema von ^{137}Cs	31a
3.6.	Massenbestimmungen nach der Tracermethode und aus dem Stromintegral.	35a

Fig.	Titel	Seite
3.7.	Die Korngrößenverteilung des Molybdänpulvers	36a
3.8.	Die Austrittsarbeit vom Cs-bedeckten Molybdän	39a
3.9.	Der Desorptionsstrom	43a
3.10.	Der Ionenstromabfall am Ende der Trennung	44a
3.11.	Theoret. und gemessene Ausbeuten	46a
3.12.	Mehrfach verwendete Emitter und ihre Ausbeuten	49a
4.1.	Ausschnitt der Nuklidkarte	50a
4.2.	Massenspektrum Spaltcaesium aus Orsay	51a
4.3.	Massenspektrum von neutronenaktiviertem Caesium	52a
4.4.	Aufbau und Zerfall vom ^{131}Cs	53a
4.5.	Massenspektrum von der ^{131}Cs-Charge	54a

7.2. Tabellenverzeichnis

Tabelle		Seite
2.1.	Der Frequenzgang der Magnetfeldregelung	12a
2.2.	Übersicht über die radioaktiven Trennungen	26a
2.3.	Arbeitsgänge und Strahlenbelastung	26b
2.4.	Die Strahlenbelastung der Operateure	26c
3.1.	Die Korrekturen für Selbstabsorption	32a
3.2.	Die Messungen an den Mo-Pillen 1 PX	33a
3.3.	Die Messungen an den Mo-Pillen 2 PX ; 3 PX	33b
3.4.	Die Messungen an den W-Pillen 1 PX	33c
3.5.	Werte zur Oberflächendiffusion von Caesium auf Wolfram	37a
4.1.	Hohlkathodenpräparationen mit Spaltcaesium	51b
5.1.	Übersicht über die gemessenen optischen Isotopieverschiebungen der Caesiumisotope.	55a

7.3. Literaturverzeichnis

AAM 62 Aamodt, R.L., L.J. Brown, B.D. Nichols, J.Appl.Phys. 33 (1962) 2080

BAU 65 Bautz, P., Diplomarbeit; Physikal.Instit.Marburg,1965

BRE 57 Brewer, R.: J. Appl.Phys. 28 (1957) 7

BRI DRE 64 Brichzy, W., G. Drexler: Sonderdruck aus dem Bericht III/1964: "Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung". Bundesminister für wissenschaftliche Forschung

DEL 61 Delgmann, L.: Diplomarbeit; Physikal.Institut, Marburg,1961

DEL WAG 62 Delgmann, L.: H. Wagner: Vortrag bei: Conference on electromagnetic separation of radioisotopes. Orsay: 1962

EGE 60 Egelhaff, H.; H. Heinemann; K.H. Seidler: Atompraxis 6 (1960) 407

EWA HIN 53 Ewald, H.; H. Hintenberger: Methoden und Anwendung der Massenspektrometrie. Verlag Chemie, Weinheim/Bergstraße, 1953

GOE 60 Goeler, S.v.; Diplomarbeit, Physikal.Institut, Marburg, 1960

GOE WAG 63 Goeler, S.v.; H. Wagner; Proceedings of the International Conf. on Ionizat.Phenomena in Gazes. Paris 1963; 405

GRU WAS Grupe, H.; M. Wassilopoulos: Kernforschungszentrum Karlsruhe (wird noch veröffentlicht)

HIG VIE 61 Higatsberger, M.J.; F.P. Viehböck: Electromagnetic Separation of Radioactive Isotopes. Springer Verlag, Wien, 1961

HOF 54A Hofmann, R.: Diss.,Marburg 1954

HOF 54B Hofmann, R.: Laborbericht, Physik.Institut,Marburg,1954

HUE 67 Hühnermann, H.: Diss.,Marburg, 1967

HUE WAG 66 Hühnermann, H.; H. Wagner: Phys.Lett.21 (1966) 303

HUE WAG 67 Hühnermann, H.; H. Wagner: Z.Phys. 199(1967)329

HUE WAG 68 Hühnermann, H.; H. Wagner: Phys.Rev.Leff. 1968 Zur Veröffentlichung eingereicht

HUS 63 Husmann, O.K.:AIAA Journal 1 (1963) 2607

JAC 30 Jakolew, K.P.: Z.Phys. 64 (1930) 378

JAE 59 Jaeger, R.G.: Dosimetrie und Strahlenschutz, Georg Thieme-Verlag; Stuttgart, 1959

JAE 67 Jaeger, R.G.: International Atomic Energy Agency; Basic Safety Standards for Radiation Protection, Vienna, 1967

JLR 61 Ilroy, R.W.: in HIG VIE 61 268

KOC 36 Koch, J.: Z.Phys. 100 (1936) 669

KOE 67 Koerner, W.: Diplomarbeit, Physik.Institut, Marburg, 1967

KRO 66 Kroemer, G.: Diplomarbeit, Physik.Institut, Marburg, 1966

LAN 13 Langmuir, I.: Phys.Rev.2 (1913) 450

LAN BLO 23 Langmuir, I.; K.B. Blodgett: Phys.Rev.22 (1923) 347

LAN BLO 24 Langmuir, I.; K.B. Blodgett: Phys.Rev.24 (1924) 49

LAN TAY 33 Langmuir, I.; J. Taylor: Phys.Rev. 44(1933) 423

LEV BEL 59 Leveshinskaja, V.N.; V.N. Beloguraf: Sov.Sol.State 1 (1959) 1806

LEV GYF 62 Levine, J.D.; E.P. Gyftopoulos: J.Appl.Phys.33 (1962) 67

LEV GYF 64A Levine, J.D.; E.P. Gyftopoulos: Surf.Science 1 (1964) 171

LEV GYF 64B Levine, J.D.; E.P. Gyftopoulos: Surf.Science 1 (1964) 225

LEV GYF 64C Levine, J.D.; E.P. Gyftopoulos: Surf.Science 1 (1964) 349

LOV 61 Love, L.O.; W.A. Bell; J. Keeton; W.K.Prater; F.M. Scheitlin: in HIG VIE 61 257

MOT LAN 26 Mott-Smith, H.M.; I. Langmuir: Phys.Rev.28 (1926) 727

MUS 67 Mussawi, M.: Diplomarbeit, Physik.Institut,Marburg,1967

NAZ SHE 61 Nazarian, G.M.; M. Shelton in: D.B.Langmuir; E.Stuhlinger; J.M.Zeller JR.:Progress in Astronautics and Rocketry. Vol.5 (1961) Pg.91

OLI 34 Oliphaut, M.L.; E.S. Shire; B.M.Crowther: Proc.Roy.Soc. A 146 (1934) 922

PIE 54 Pierce, J.R.: Theory and Design of electron beams. D.van Nostrand Co; Inc. New York, 1954

RAS WAN 64 Rasor, N.S.; C. Warner: J.Appl.Phys.35(1964) 2589

ROT KLE 55 Rothe, H.; W. Kleen: Hochvakuum-Elektronenröhren Bd.1. Akadem.Verlags-G.m.b.H., Frankfurt/M.,1955

SEE 61 Seelmann-Eggebert, W.; J. Pfennig; H. Münzel; G.Zündel: Nuklidkarte, Erasmusdruck, Mainz, 1961

SEE 67 Seelmann-Eggebert, W.: Private Mitteilung, 1967

SMY 38 Smythe, W.R.; J.H. Rumbaugh; S.S. West: Phys.Rev.54 (1938) 657

TRU WOT 65 Truong, M.; H. Wotke: Nucl.Instr.Meth.38 (1965) 23

UHL 63 Uhler, J.: Arkiv Fys. 24 (1963) 349

WAG 61 Wagner, H.: Laborbericht; Phys.Instit. Marburg, 1961

WAG 65 Wagner, H.: Nucl.Instr.Meth. 38 (1965) 69

WAH 65 Wahl, J.: Diplomarbeit, Phys.Institut, Marburg, 1965

WAL 37 Walcher, W.: Phys. Z. 38 (1937) 961

WAL 38 Walcher, W.: Z.f.Phys. 108 (1938) 376

WAL 43 Walcher, W.: Z.f.Phys. 121 (1943) 604

WAL 51 Walcher, W.: Z.Angew.Phys. 3 (1951) 189

ZUC 61 Zuccaro, D.; R.C. Speiser; J.M.Teem: Progress in Astronautics and Rocketry, Vol.5., 1961 pg.107 - siehe NAZ SHE 61

Ich danke Herrn Prof. Dr. W. Walcher für seine wohlwollende Förderung und für viele Stunden der Diskussion, zu der er sich immer wieder die Zeit nahm. Ich danke meinen Mitarbeitern, die in Kapitel 2.1. aufgeführt sind. Herrn Dr. W. Fischer bin ich für jahrelange Betreuung während meiner Ausbildung verpflichtet. Seine Hilfsbereitschaft hat sich auch bei den vorliegenden Messungen bewährt, Herr Dr. Elbel hat die Anregung zu den Caesium-Untersuchungen gegeben.

Stellvertretend für die Werkstatt des Physikalischen Instituts möchte ich dem Werkstattleiter, Feinmechanikermeister R. Zeisig, für die gewissenhafte Arbeit zum Aufbau der Anlage danken.

Lebenslauf.

Am 23. Januar 1930 wurde ich, Karl August Hermann W a g n e r, als Sohn des Kraftfahrers Wilhelm Wagner und seiner Ehefrau Martha, geborene Dörrbaum, in Kassel geboren.

Von 1936 bis 1940 besuchte ich die Bürgerschule 23/24 in Kassel. Der folgende Mittelschulbesuch wurde nach einigen Unterbrechungen durch die Kriegsereignisse 1946 abgeschlossen. Dann trat ich über zum Realgymnasium Weserthor, Kassel, und legte dort 1949 die Reifeprüfung ab.

1950 begann ich in Marburg das Studium der Mathematik und Physik. Nach der Diplomvorprüfung in Physik bestand ich 1957 die Diplomhauptprüfung.

Dann arbeitete ich am Bau eines neuen elektromagnetischen Isotopenseparators und führte mit Hilfe der Anlage die in der vorliegenden Arbeit beschriebenen Experimente durch.

Meine akademischen Lehrer waren die Herren Professoren und Dozenten

Becker, Cappeller, Flügge, Herrmann, Hückel, Huster, Kamke, Marschal, Vogt, Walcher und Wolter im Fach Physik.

Meerwein, Kuhn, Mahr und Starke in den Fächern Chemie, physikalische Chemie und Kernchemie; Winkler im Fach Kristallografie.

Krafft, Reidemeister und A. Schmidt im Fach Mathematik.